

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 7 月 14 日 (14.07.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/063920 A1

(51) 国際特許分類: C09K 11/06, H05B 33/14

(NAKAMURA, Hiroaki) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/019727

(22) 国際出願日: 2004 年 12 月 24 日 (24.12.2004)

(74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 プリデ
ストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2003-432759
2003 年 12 月 26 日 (26.12.2003) JP

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 岩隈 俊裕 (IWAKUMA, Toshihiro) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 川村 久幸 (KAWAMURA, Hisayuki) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 池田 秀嗣 (IKEDA, Hidetsugu) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 細川 地潮 (HOSOKAWA, Chishio) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 荒金 崇士 (ARAKANE, Takashi) [JP/JP]; 〒2990205 千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP). 中村 浩昭

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING SAME

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: Disclosed is a material for organic electroluminescent devices which is composed of a compound having a specific structure. Also disclosed is an organic electroluminescent device which comprises an organic thin film layer composed of one or more layers including at least a light-emitting layer and interposed between a cathode and an anode, wherein at least one layer of the organic thin film layer contains the material for organic electroluminescent devices. The material for organic electroluminescent devices enables to provide an organic electroluminescent device having a high luminous efficiency, excellent heat resistance and long life while having no pixel defects. Also disclosed is an organic electroluminescent device using such a material for organic electroluminescent devices.

(57) 要約: 特定構造の化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料、及び、陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、発光効率が高く、画素欠陥が無く、耐熱性に優れ、かつ寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供可能な有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。



WO 2005/063920 A1

明細書

有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子（有機EL素子）に関し、特に、発光効率が高く、画素欠陥がなく、耐熱性に優れ、かつ寿命の長い有機EL素子用材料及び有機EL素子に関するものである。

背景技術

有機EL素子は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。

イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告〔C. W. Tang、S. A. Vanslyke、アプライドフィジックスレターズ（Applied Physics Letters）、51巻、913頁、1987年等〕がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。

Tangらは、トリス（8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム）を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。

積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成

する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。

この例のように、有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。

こうした積層型構造素子では、注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

有機EL素子の発光材料としては、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ジスチルルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告され、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特許文献1及び特許文献2参照）。

また、近年、有機EL素子の発光層に、蛍光材料の他に、りん光材料を利用することも提案されている（例えば、非特許文献1及び非特許文献2参照）。

このように有機EL素子の発光層において、有機りん光材料の励起状態の1重項状態と3重項状態とを利用することにより、高い発光効率が達成されている。

有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際には、スピン多重度の違いから1重項励起子と3重項励起子とが1:3の割合で生成すると考えられているので、りん光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子の3~4倍の発光効率の達成が考えられる。

このような有機EL素子においては、3重項の励起状態又は3重項の励起子が消光しないように順次、陽極、正孔輸送層、有機発光層、電子輸送層（正孔阻止層）、電子注入層、陰極のように

層を積層する構成が用いられ、有機発光層にホスト化合物とりん光発光性の化合物が用いられてきた（例えば、特許文献 3 及び特許文献 4 参照）。

これらの特許文献では、ホスト化合物として、4, 4-N, N ジカルバゾールビフェニルが用いられてきたが、この化合物はガラス転移温度が 110℃以下であり、更に対称性がよすぎるため、結晶化しやすく、又、素子の耐熱試験を行った場合、短絡や画素欠陥が生じるという問題があった。

更に、その蒸着した際には、異物や電極の突起が存在する箇所等で結晶成長が起こり、耐熱試験前の初期の状態より欠陥が生じ、経時的に増加することも見出された。

【特許文献 1】 特開平 8-239655 号公報

【特許文献 2】 特開平 7-138561 号公報

【特許文献 3】 米国特許第 6,097,147 号明細書

【特許文献 4】 国際公開 WO 01/41512 号公報

【非特許文献 1】 D.F.O'Brien and M.A.Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices" Applied Physics letters Vol. 74 No.3, pp442-444, January 18, 1999

【非特許文献 2】 M.A.Baldo et al "Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence" Applied Physics letters Vol.75 No.1, pp 4-6, July 5, 1999

発明の開示

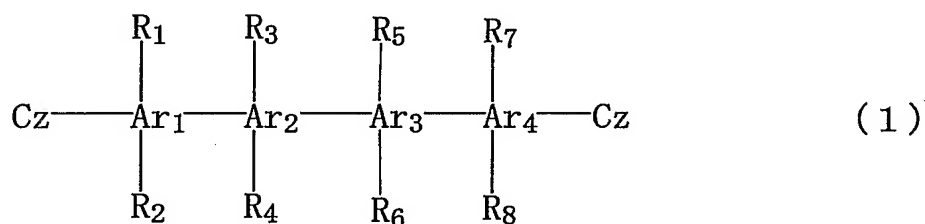
本発明は、上記の課題を解決するためになされたもので、発光効率が高く、画素欠陥がなく、耐熱性に優れ、かつ寿命の長い有

機 E L 素子用材料及びそれを用いた有機 E L 素子を提供することを目的とする。

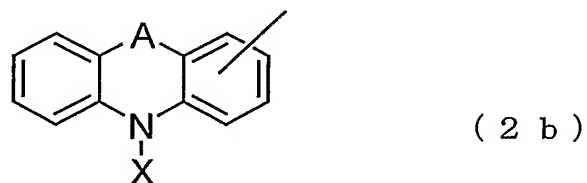
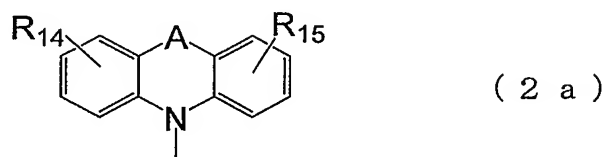
本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、分子量が大きく、対称性の低い化合物をホスト材料として用いることにより、上記目的を達成することを見出し本発明を解決するに至った。

即ち、本発明は、下記一般式 (1) で表される化合物からなる有機 E L 素子用材料を提供するものである。

1. 下記一般式 (1) で表される化合物からなる有機 E L 素子用材料



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$ はそれぞれベンゼン残基を表し、 Cz は下記一般式 (2a) 又は (2b) 〕



(式中、 A は単結合、 $-(CR_9R_{10})_n-$ 、 $-(SiR_{11}R_{12})_n-$ 、 $-NR_{13}-$ 、 $-O-$ 、又は $-S-$ を表し、 n は 1 ~ 3

の整数を表わす。R₉～R₁₅は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数3～40の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキルアミノ基を表し、R₉とR₁₀、又はR₁₁とR₁₂は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

Xは、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキルアミノ基を表す。)

で表される基である。

R₁～R₈は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の

芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリアルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキルアミノ基、又は C_z 基であり、隣接した炭素原子に結合した場合は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

但し、一般式 (1) において、 $A_{r_1} \sim A_{r_4}$ の少なくとも 1 つは m -フェニレン又は o -フェニレンであるか、 $A_{r_1} \sim A_{r_4}$ の全てが p -フェニレンである場合は、 $R_1 \sim R_8$ の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、又は上記 C_z 基である。]

2. 一般式 (1) において、 A_{r_2} 及び A_{r_3} は、それぞれ独立に、 m -フェニレン又は o -フェニレンであり、 A_{r_1} 及び A_{r_4} は p -フェニレンである上記 1 記載の有機 EL 素子用材料、

3. 一般式 (1) において、 A_{r_1} 及び A_{r_4} は、それぞれ独立に、 m -フェニレン又は o -フェニレンであり、 A_{r_2} 及び A_{r_3} は p -フェニレンである上記 1 記載の有機 EL 素子用材料、

4. 一般式 (1) において、 A_{r_1} 及び A_{r_4} は、それぞれ独立に、 m -フェニレンであり、かつ R_1 又は R_7 は置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基又は C_z 基である上記 1 記載の有機 EL 素子用材料、

5. 一般式 (1) において、 C_z 基が置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換の 9-フェニルカルバゾリル基である上記 1 記載の有機 EL 素子用材料。

6. 一般式 (1) の化合物が有機 EL 素子のホスト材料である上

記 1 記載の有機 E L 素子用材料、

7. 陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機 E L 素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、上記 1 ～ 6 のいずれかに記載の有機 E L 素子用材料を含有する有機 E L 素子、

8. 上記発光層が、上記有機 E L 素子用材料をホスト材料として含有する上記 7 記載の有機 E L 素子、

9. 上記発光層がホスト材料とりん光発光性の金属錯体からなる上記 8 に記載の有機 E L 素子、

10. 陰極と有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されている上記 7 に記載の有機 E L 素子、

11. 上記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素誘導体を主成分として含有する上記 7 記載の有機 E L 素子

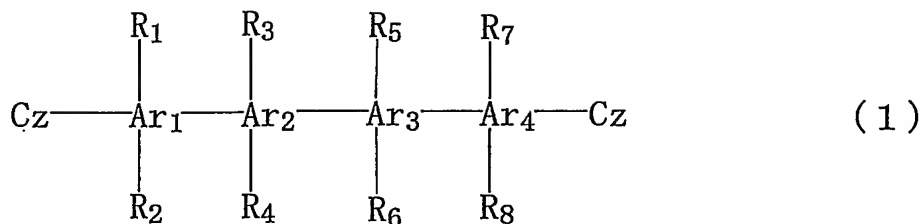
を提供するものである。

産業上の利用可能性

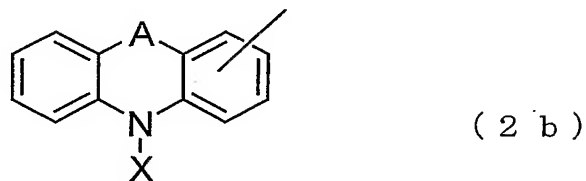
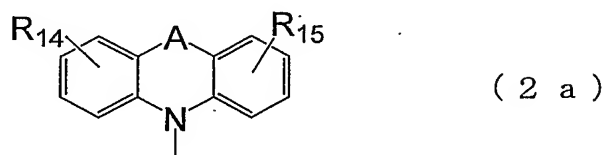
本発明の一般式 (1) で表される化合物からなる有機 E L 素子用材料を利用すると、発光効率が高く、画素欠陥がなく、耐熱性に優れ、かつ寿命の長い有機 E L 素子が得られる。このため、本発明の有機 E L 素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。

発明を実施するための最良の形態

本発明の有機 E L 素子用材料は、下記一般式 (1) で表される化合物からなる。



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$ はそれぞれベンゼン残基を表し、 Cz は下記一般式 (2a) 又は (2b) 〕



〔式中、 A は単結合、 $-(CR_9R_{10})_n-$ 、 $-(SiR_{11}R_{12})_n-$ 、 $-NR_{13}-$ 、 $-O-$ 、又は $-S-$ を表し、 n は 1 ～ 3 の整数を表わす。 $R_9 \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数 3 ～ 40 の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリアルアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキルアミノ基を

表し、 R_9 と R_{10} 、又は R_{11} と R_{12} は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

Xは、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキルアミノ基を表す。)

で表される基である。

$R_1 \sim R_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキルアミノ基、又は C_z 基であり、隣接した炭素原子に結合した場合は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

但し、一般式(1)において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも1つはm-フェニレン又はo-フェニレンであるか、 $Ar_1 \sim Ar_4$

の全てが p-フェニレンである場合は、 $R_1 \sim R_8$ の少なくとも 1 つは置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、又は上記 C_z 基である。]

一般式 (1) における $R_1 \sim R_8$ 、一般式 (2a) 及び (2b) における $R_9 \sim R_{15}$ 及び X の置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキル基としては、好ましくは置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルキル基である。

このアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、n-トリデシル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、n-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモ

プロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1,2-ジニトロエチル基、2,3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリニトロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基及び3,5-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

なかでも、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基及び3,5-テトラメチルシクロヘキシル基等が好ましい。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)

における $R_9 \sim R_{15}$ 及び X の置換もしくは無置換の核原子数 3 ~ 40 の複素環基としては、好ましくは置換もしくは無置換の核原子数 5 ~ 20 の複素環基である。

この複素環基としては、例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、1-ピラゾリル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、

ル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、 β -カルボリン-1-イル、 β -カルボリン-3-イル、 β -カルボリン-4-イル、 β -カルボリン-5-イル、 β -カルボリン-6-イル、 β -カルボリン-7-イル、 β -カルボリン-9-イル、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナンスロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェナンスロリン-4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル基、1,9-フェナンスロ

リン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナンスロリン-3-イル基、1,10-フェナンスロリン-4-イル基、1,10-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2,9-フェナンスロリン-3-イル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9-フェナンスロリン-7-イル基、2,9-フェナンスロリン-8-イル基、2,9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,8-フェナンスロリン-5-イル基、2,8-フェナンスロリン-6-イル基、2,8-フェナンスロリン-7-イル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル基、2,8-フェナンスロリン-10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1-イル基、2,7-フェナンスロリン-3-イル基、2,7-フェナンスロリン-4-イル基、2,7-フェナンスロリン-5-イル基、2,7-フェナンスロリン-6-イル基、2,7-フェナンスロリン-8-イル基、2,7-フェナンスロリン-9-イル基、2,7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-

メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-*t*-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル-1-インドリル基、4-*t*-ブチル-1-インドリル基、2-*t*-ブチル-3-インドリル基及び4-*t*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

なかでも、2-ピリジニル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基等が好ましい。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)における $R_9 \sim R_{15}$ 及びXの置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基は、好ましくは、置換もしくは無置換の炭素

数 1 ～ 30 のアルコキシ基であり、 $-OY$ で表される。

このYとしては、上記置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキル基で挙げた具体例が挙げられる。

一般式 (1) における $R_1 \sim R_8$ 、一般式 (2a) 及び (2b) における $R_9 \sim R_{15}$ 及び X の置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基としては、好ましくは置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 18 の芳香族炭化水素基である。

この芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、, 2, 3-キシリル基、3, 4-キシリル基、2, 5-キシリル基及びメシチル基等が挙げられる。

なかでも、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、9-フェナントリル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイ

ル基、4-ビフェニルイル基、p-トリル基及び3,4-キシリル基等が好ましい。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)における $R_9 \sim R_{15}$ 及びXの置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基は、好ましくは、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアリールオキシ基であり、 $-OAr$ で表される。

この Ar としては、上記置換もしくは無置換の核原子数6～40の芳香族炭化水素基で挙げた具体例が挙げられる。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)における $R_9 \sim R_{15}$ 及びXは、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基である。

このアラルキル基としては、例えば、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、

m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基及び1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

なかでも、ベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基等が好ましい。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)における $R_9 \sim R_{15}$ 及びXの置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルケニル基は、好ましくは置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基である。

このアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1,3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2,2-ジフェニルビニル基、1,2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1,1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3,3-ジフェニルアリル基、1,2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基及び3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

なかでも、スチリル基、2,2-ジフェニルビニル基及び1,2-ジフェニルビニル基等が好ましい。

一般式(1)における $R_1 \sim R_8$ 、一般式(2a)及び(2b)における $R_9 \sim R_{15}$ 及びXの、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数7～40

のアラルキルアミノ基は、好ましくは置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアラルキルアミノ基である。

上記アルキルアミノ基、アリールアミノ基及びアラルキルアミノ基は、 $-NQ_1Q_2$ と表すことができ、 Q_1 及び Q_2 としては、例えば、それぞれ独立に、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブromoメチル基、1-ブromoエチル基、2-ブromoエチル基、2-ブromoイソブチル基、1, 2-ジブromoエチル基、1, 3-ジブromoイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-ト

リアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、4-スチリルフェニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イ

ソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、
2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベン
ゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、
6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾ
フラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニ
ル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、
7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、
4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリ
ル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル
基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリ
ル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサ
リニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-
カルバジリル基、2-カルバジリル基、3-カルバジリル基、4
-カルバジリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンス
リジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニ
ル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、
8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-
フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル
基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニ
ル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナ
ンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル
基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナ
ンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、
1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロ
リン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、
1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロ
リン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1,

8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジ

ニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-*t*-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル-1-インドリル基、4-*t*-ブチル-1-インドリル基、2-*t*-ブチル-3-インドリル基及び4-*t*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

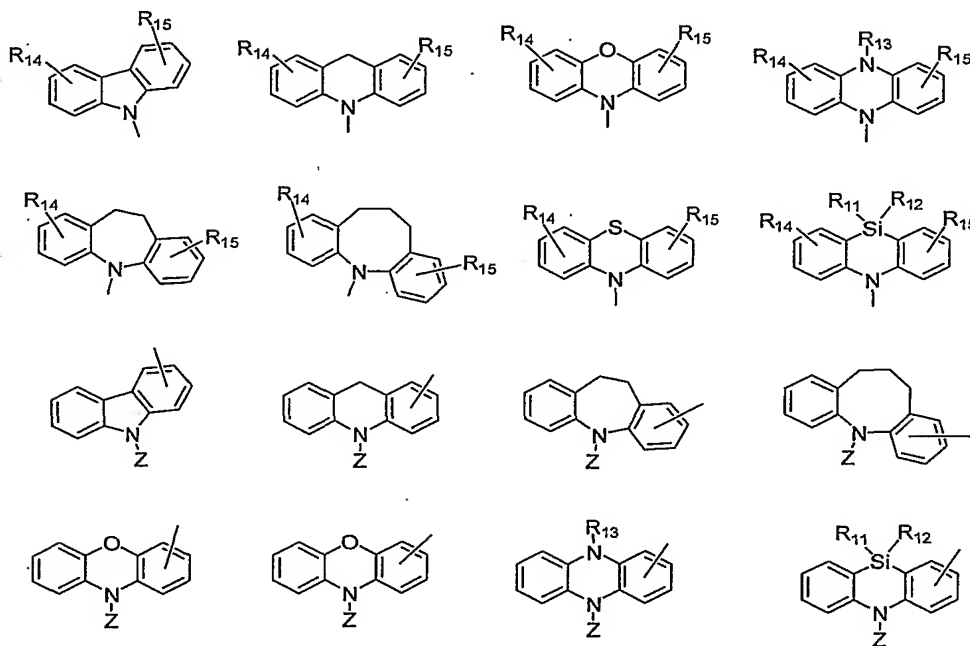
なかでも、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、*p*-トリル基、4-ビフェニルイル基等好ましい。

また、一般式(1)、(2a)又は(2b)において、 $R_1 \sim R_8$ が隣接した炭素原子に結合し、互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成する場合、 R_9 と R_{10} 、又は R_{11} と R_{12} は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成する場合、 $R_1 \sim R_8$ 、 R_9 、 R_{10} 、 R_{11} 及び R_{12} としては、 $-R_1-R_2-$ 、

—R₃—R₄—、—R₅—R₆—、—R₇—R₈—、—R₉—R₁₀—、—R₁₁—R₁₂—、更に具体的構造としては、—(CH₂)₄—、—(CH₂)₅—、—CH=CH—CH=CH—、—CH₂—CH=CH—CH₂—等が挙げられる。

一般式(1)において、C_z基は上記一般式(2a)又は(2b)で表される基である。

C_z基としては、例えば、以下の基が挙げられる。



上記式中、R₁₄及びR₁₅は上記置換基を表す。

また、Zは、置換もしくは無置換の核炭素数6～18の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数7～20のアラルキル基である。

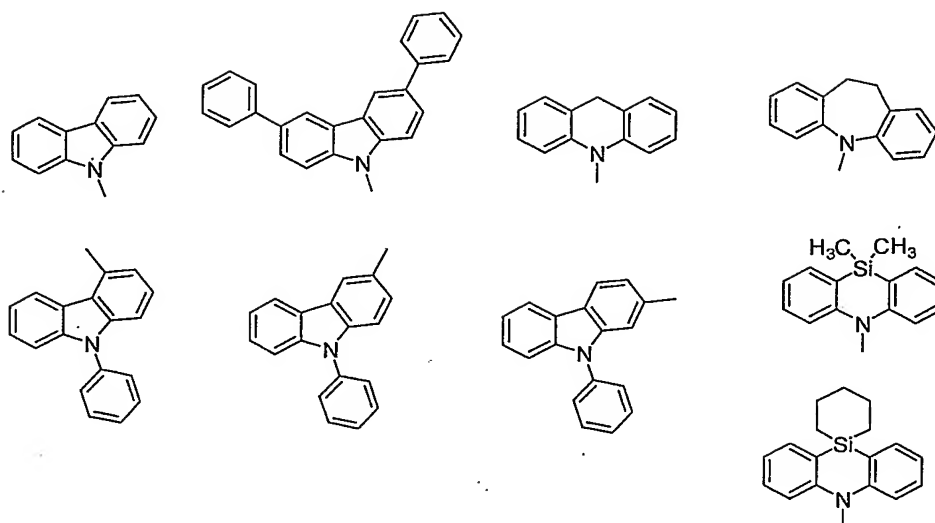
上記芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、トリル基、ビフェニル基及びターフェニル基等が好ましく、フェニル基、ビフェニル基及びトリル基等が更に好ましい。

また、上記アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピ

ル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基等が好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基等更に好ましい。

上記アラルキル基としては、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、ベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基及び2-フェニルイソプロピル基等が好ましく、ベンジル基及び*p*-シアノベンジル基等が更に好ましい。

更に、好ましいC₂基としては、以下の基が挙げられる。



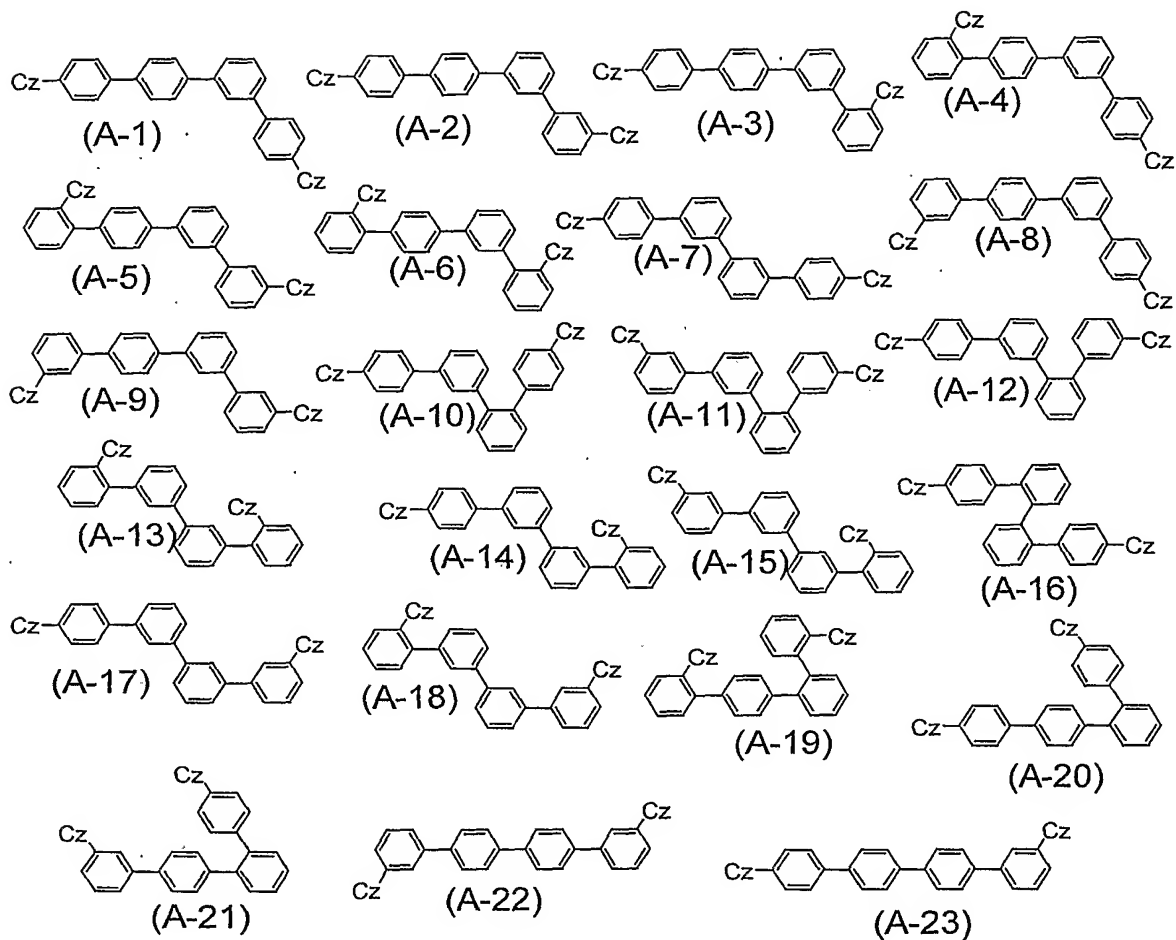
C_z基としては、特に、置換もしくは無置換のカルバゾリル基、置換もしくは無置換の9-フェニルカルバゾリル基が好ましい。

本発明の一般式(1)で表される化合物からなる有機EL素子用材料の具体的構造としては、下記の様な構造が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

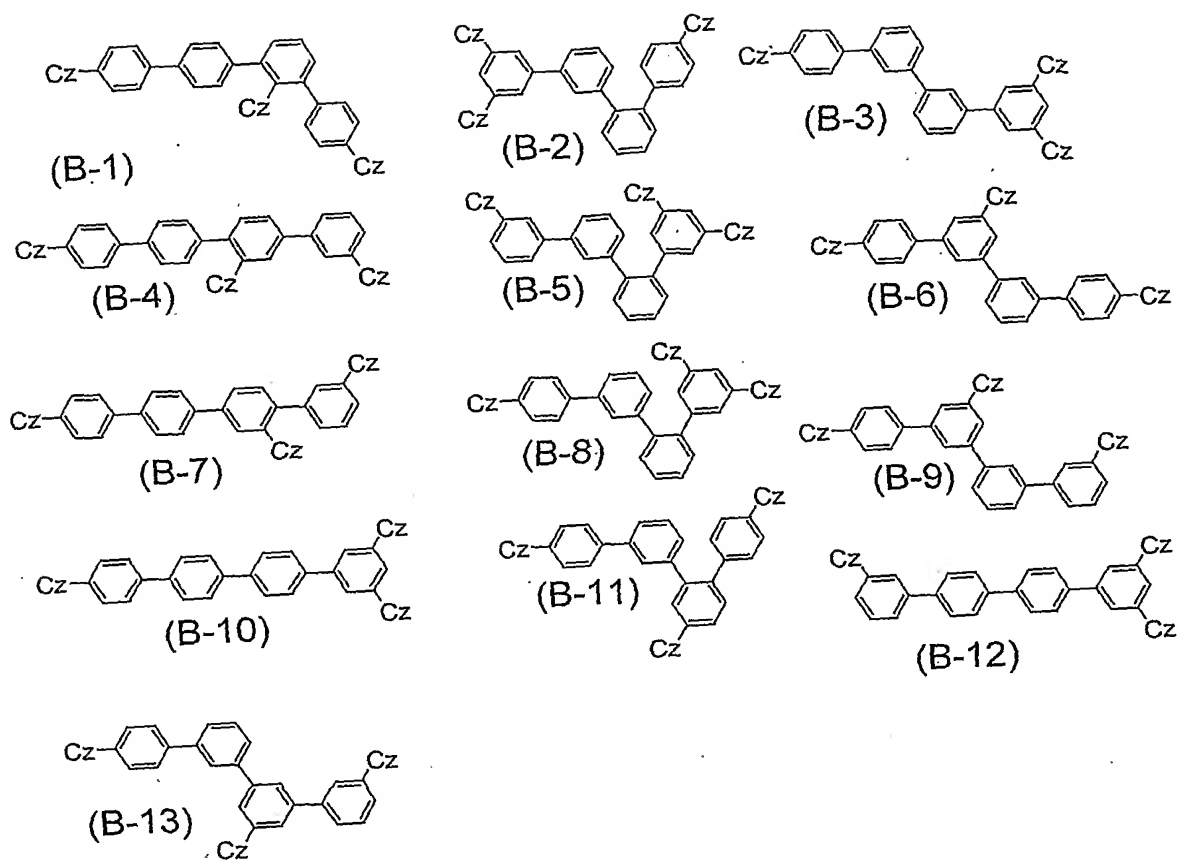
下記構造式中の少なくとも1つのベンゼン残基は、R₁～R₈から選ばれ、4個のベンゼン残基は、それぞれ最大2個の置換基を有することができる。

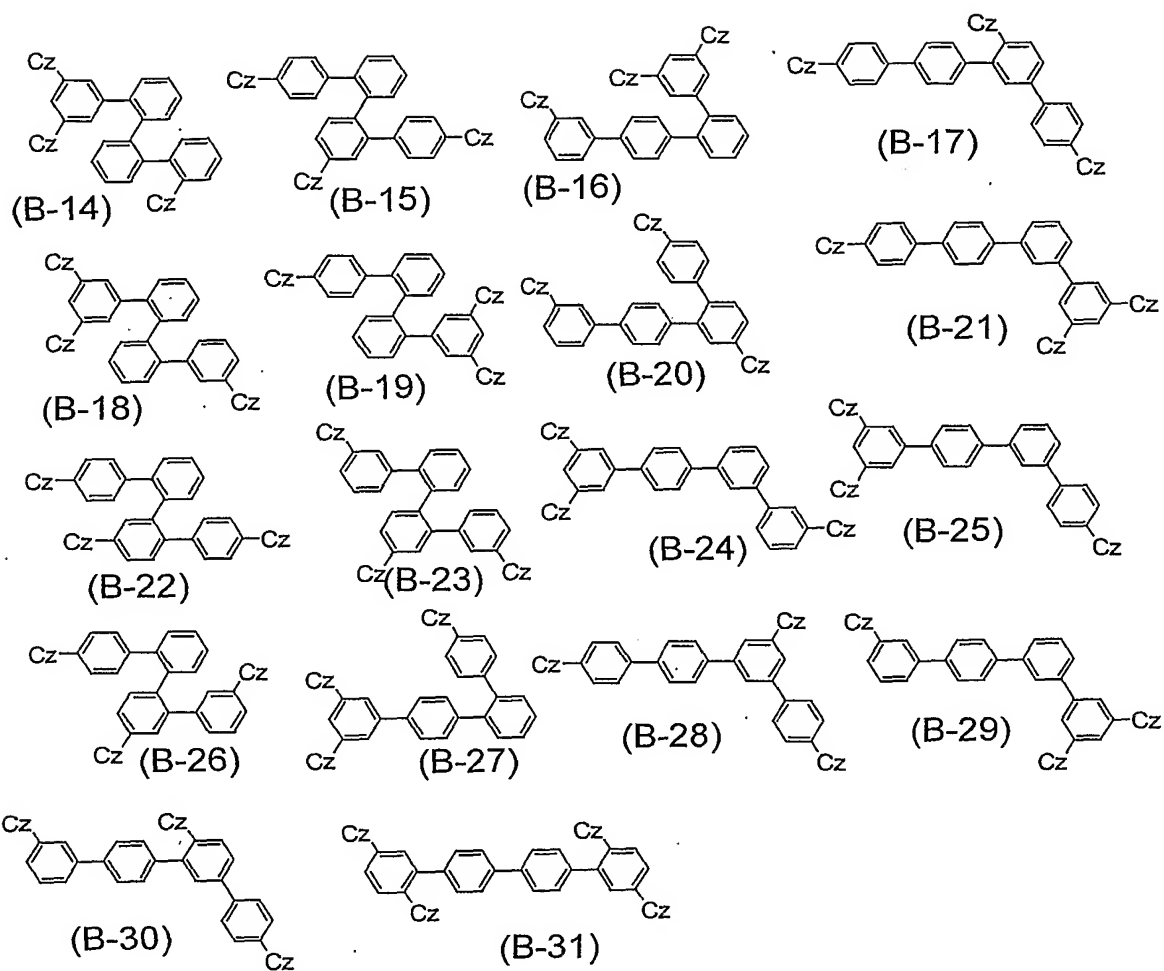
一般式(1)において、Ar₁～Ar₄の少なくとも1つがm-フェニレン又はo-フェニレンである場合の代表例としては、以下の化合物が挙げられる。

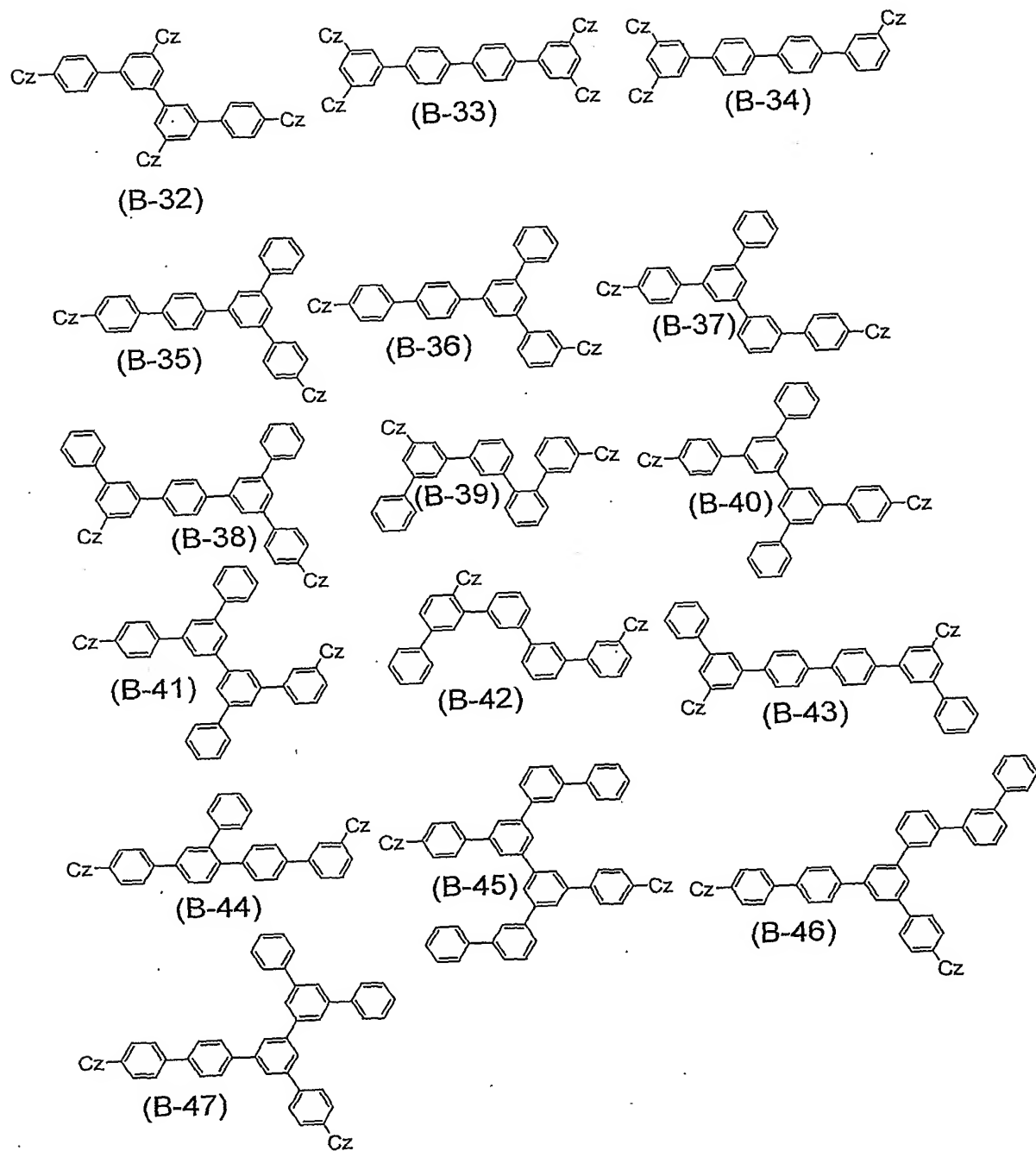
無置換の場合の代表例としては、化合物(A-1)～(A-23)等が挙げられる。

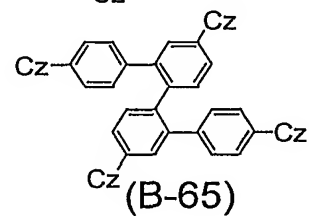
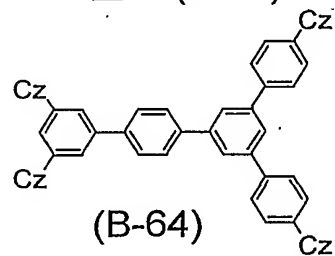
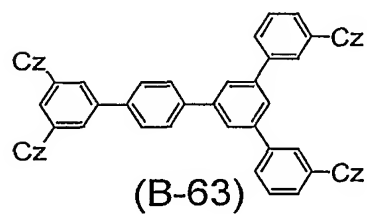
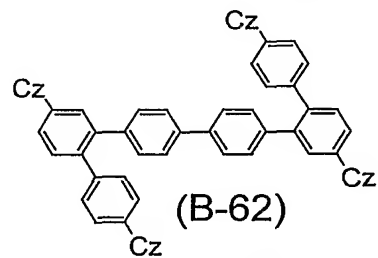
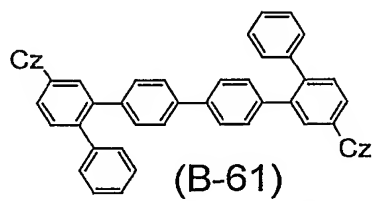
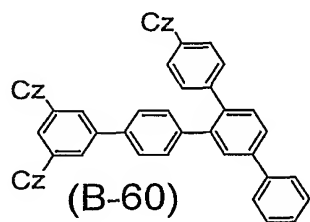
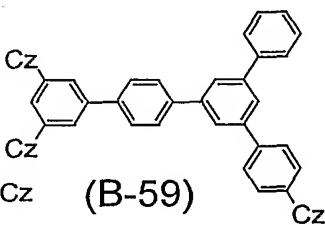
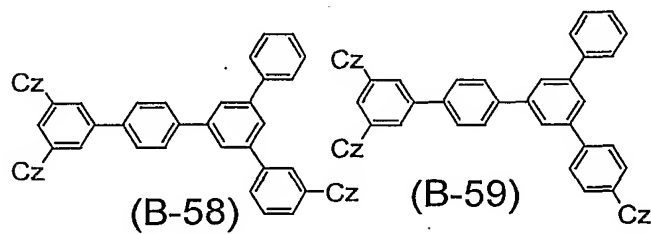
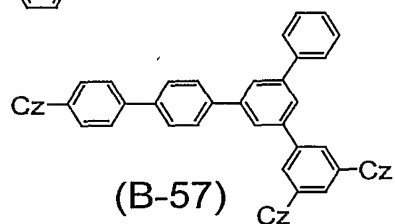
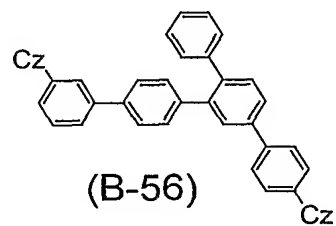
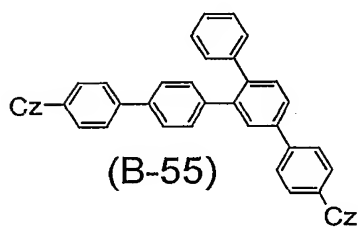
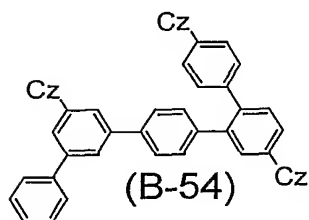
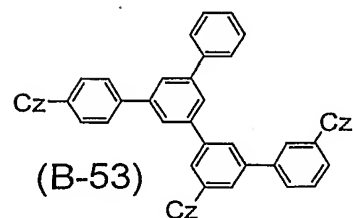
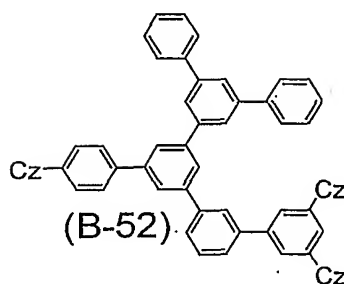
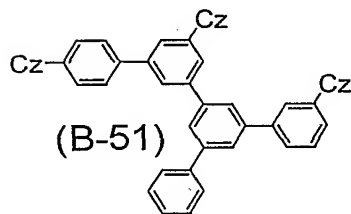
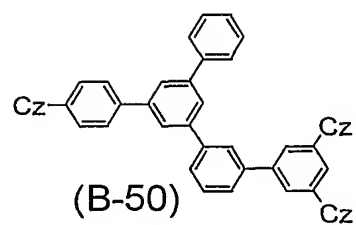
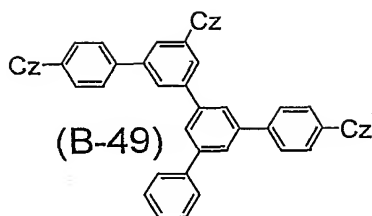
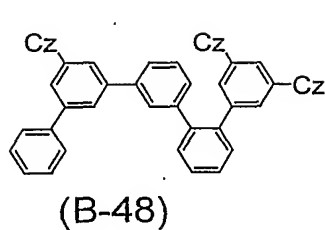


置換基を有する場合の代表例としては、化合物(B-1)~(B-65)等が挙げられる。

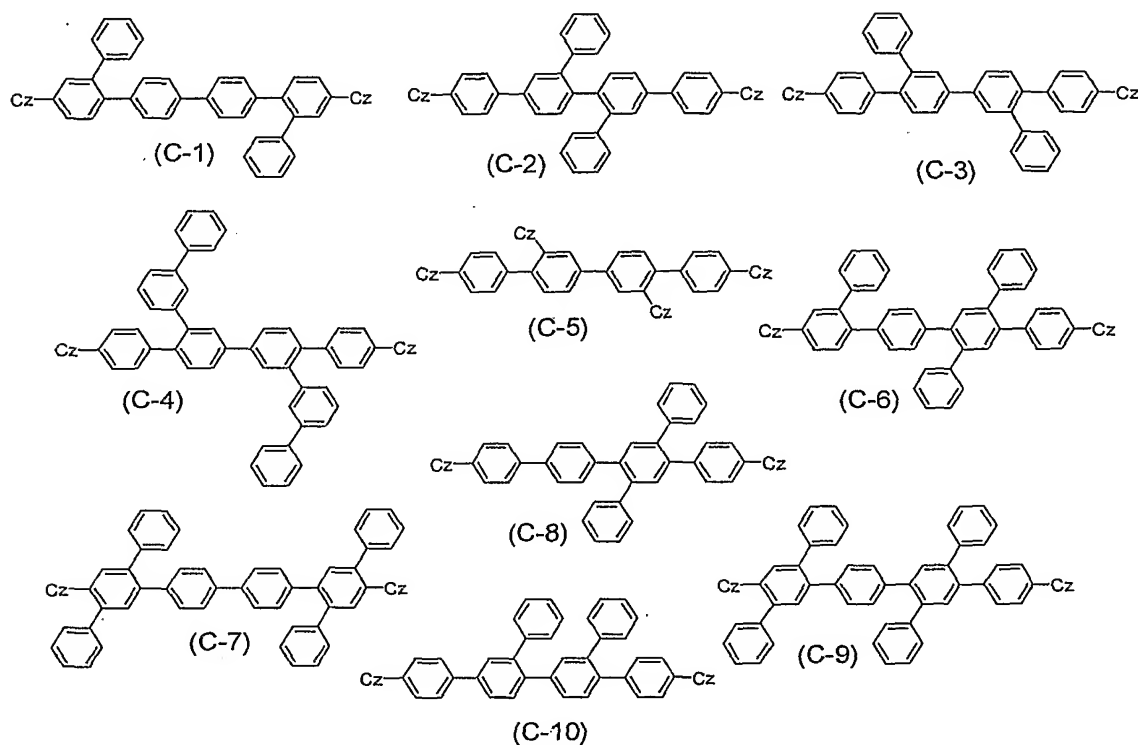








また、一般式（１）において、 $A r_1 \sim A r_4$ の全てがｐ－フェニレンである場合の具体例としては、（Ｃ－１）～（Ｃ－９）等が挙げられる。



以上の一般式（１）で表される化合物からなる有機ＥＬ素子用材料において、 $A r_2$ 及び $A r_3$ が、それぞれ独立に、ｍ－フェニレン又はｏ－フェニレンであり、 $A r_1$ 及び $A r_4$ がｐ－フェニレンである場合、 $A r_1$ 及び $A r_4$ が、それぞれ独立に、ｍ－フェニレン又はｏ－フェニレンであり、 $A r_2$ 及び $A r_3$ がｐ－フェニレンである場合、 $A r_1$ 及び $A r_4$ が、それぞれ独立に、ｍ－フェニレンであり、かつ R_1 又は R_7 が置換もしくは無置換の核炭素数６～４０の芳香族炭化水素基又はＣｚ基である場合が好ましい。

次に、本発明の有機ＥＬ素子について説明する。

本発明の有機ＥＬ素子は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を

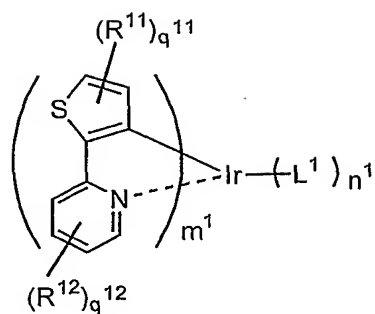
有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、本発明の有機EL素子用材料を含有する。

多層型の有機EL素子の構造としては、例えば、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／陰極、陽極／発光層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、陽極／正孔輸送層（正孔注入層）／発光層／正孔障壁層／電子輸送層（電子注入層）／陰極、等の多層構成で積層したものが挙げられる。

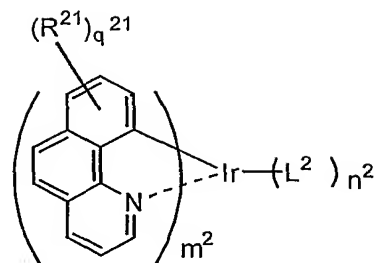
上記発光層は、ホスト材料とりん光性の発光材料からなり、該ホスト材料が上記有機EL素子用材料からなると好ましい。

りん光性の発光材料としては、りん光量子収率が高く、発光素子の外部量子効率をより向上させることができるという点で、イリジウム錯体、オスミウム錯体、白金錯体等の金属錯体が好ましく、イリジウム錯体及び白金錯体がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体が最も好ましい。

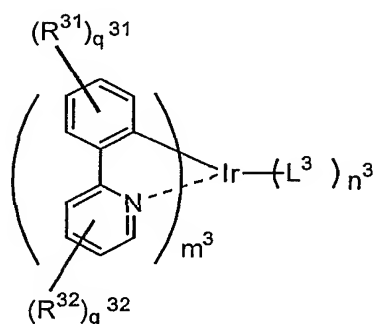
オルトメタル化金属錯体の更に好ましい形態としては、下記一般式（2）～（4）で表される化合物であり、一般式（2）又は（3）で表される化合物が特に好ましい。



(2)



(3)



(4)

一般式 (2) において、 R^{11} 、 R^{12} は、アルキル基、アリール基、フッ素化アルキル基、フッ素化アリール基であり、アルキル基、フッ素化アルキル基、アリール基が好ましく、アルキル基、フッ素化アルキル基がより好ましい。

q^{11} は 0 ～ 2 の整数を表し、0、1 が好ましく、0 がより好ましい。

q^{12} は 0 ～ 4 の整数を表し、0、1 が好ましく、0 がより好ましい。

q^{11} 、 q^{12} が 2 以上の場合、複数個の R^{11} 、 R^{12} はそれぞれ同一又は互いに異なっても良く、また、連結して縮環を形成してもよい。

L^1 は配位子を表わし、配位子としては、上記オルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子等が挙げられ、オルト

メタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子及び含窒素ヘテロ環配位子、ジケトン配位子、ハロゲン配位子、ビピリジル配位子が好ましく、より好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子、ビピリジル配位子である。

n^1 は 0 ～ 5 の整数を表し、0 が好ましい。

m^1 は 1, 2 又は 3 を表し、好ましくは 3 である。

n^1 , m^1 の数の組み合わせは、一般式 (2) で表される金属錯体が中性錯体となる数の組み合わせが好ましい。

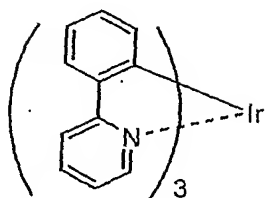
一般式 (3) において、 R^{21} , n^2 , m^2 , L^2 は、それぞれ上記 R^1 , n^1 , m^1 , L^1 と同様である。 q^{21} は 0 ～ 8 の整数を表し、0 が好ましい。

q^{21} が 2 以上の場合は、互いに同一でも異なってもよく、また、連結して縮合環を形成してもよい。

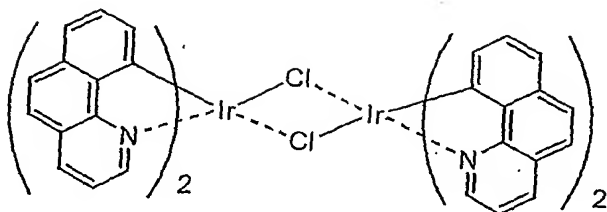
一般式 (4) において、 R^{31} , R^{32} , q^{31} , q^{32} , n^3 , m^3 , L^3 は、それぞれ上記 R^{11} , R^{12} , q^{11} , q^{12} , n^1 , m^1 , L^1 と同様である。

上記りん光性の発光材料としては、以下に示すイリジウム錯体が好ましい。

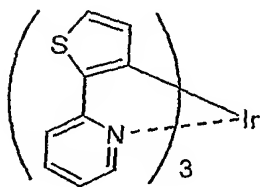
(I-1)



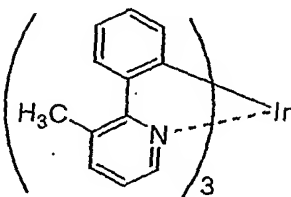
(I-2)



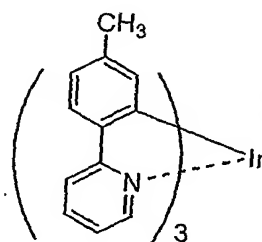
(I-3)



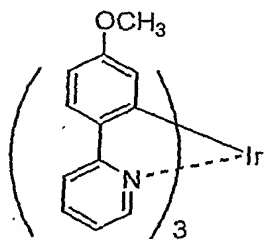
(I-4)



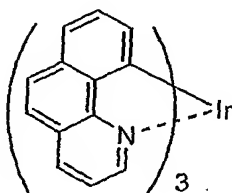
(I-5)



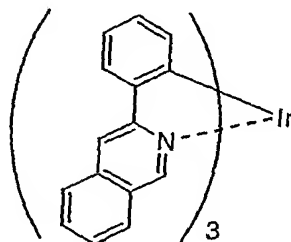
(I-6)



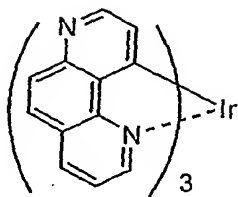
(I-7)



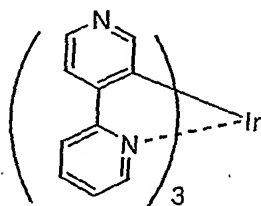
(I-8)



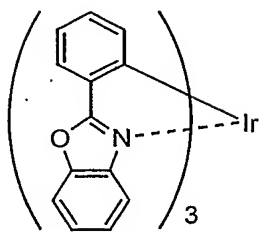
(I-9)



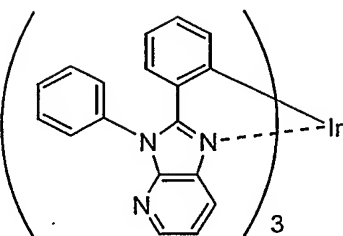
(I-10)



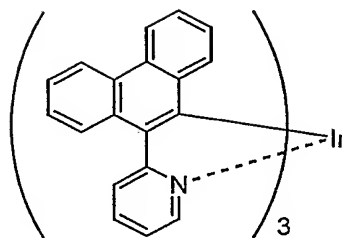
(I -11)



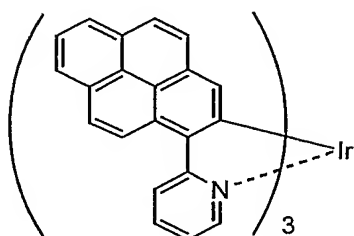
(I -12)



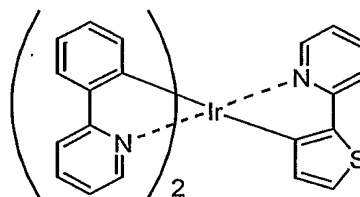
(I -13)



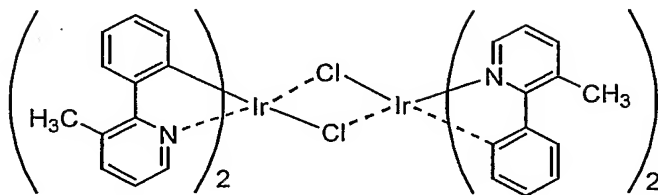
(I -14)



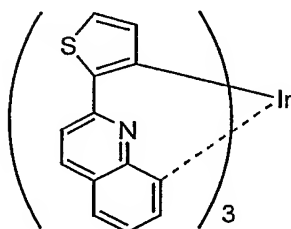
(I -15)



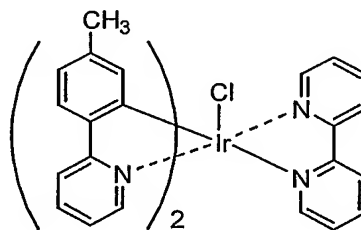
(I -16)



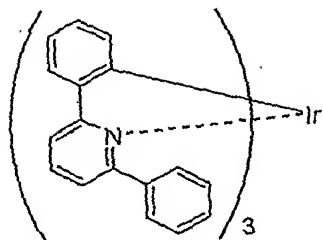
(I -17)



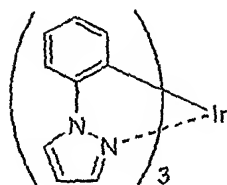
(I -18)



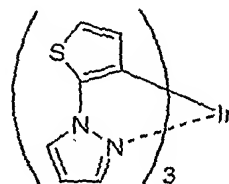
(I-19)



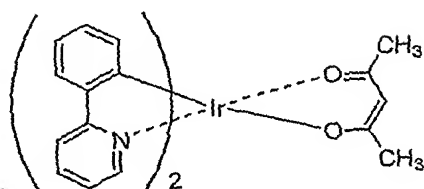
(I-20)



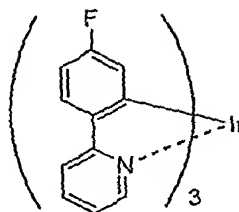
(I-21)



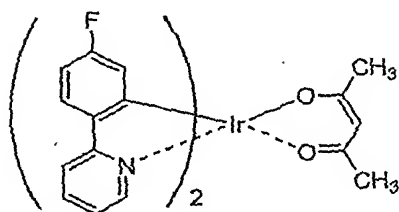
(I-22)



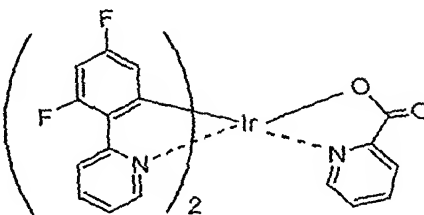
(I-23)



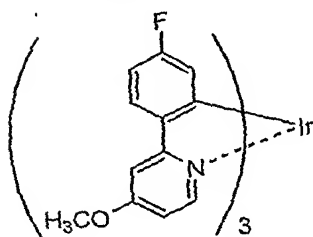
(I-24)



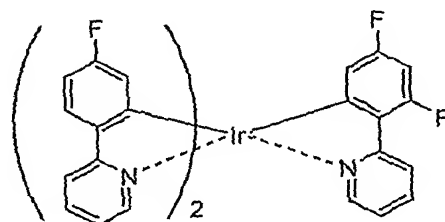
(I-25)



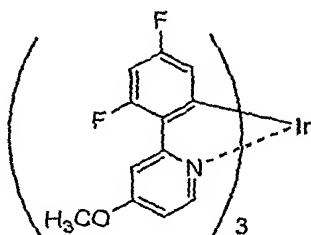
(I-26)



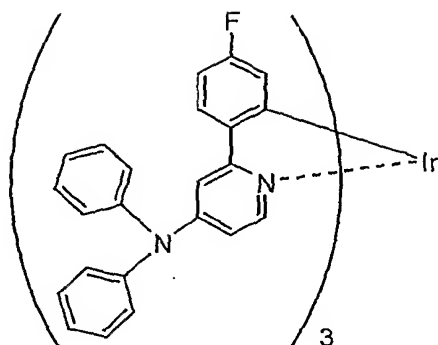
(I-27)



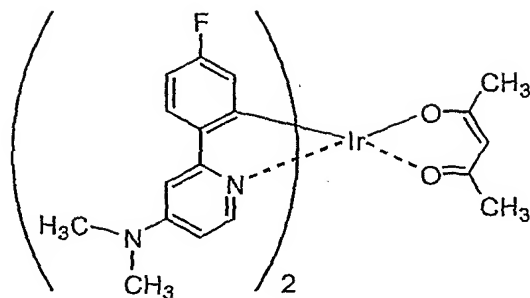
(I-28)



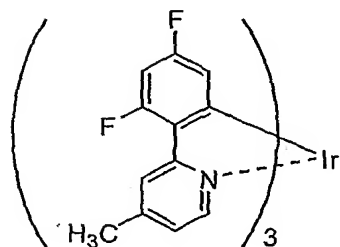
(I-29)



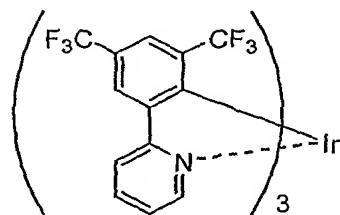
(I-30)



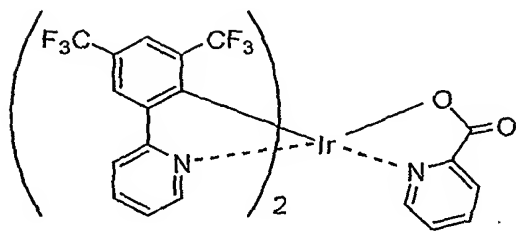
(I-31)



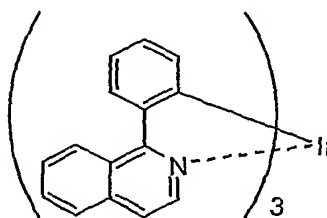
(I-32)



(I-33)



(I-34)



本発明の有機EL素子は、陰極と有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されてなると好ましい。

還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属錯体、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属錯体、

アルカリ土類金属化合物、希土類金属、希土類金属錯体、及び希土類金属化合物等から選ばれた少なくとも一種類が挙げられる。

上記アルカリ金属としては、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）、Cs（仕事関数：1.95 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

これらのうち、好ましくはK、Rb、Cs、更に好ましくはRb又はCsであり、最も好ましくはCsである。

上記アルカリ土類金属としては、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）、Ba（仕事関数：2.52 eV）等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

上記、希土類金属としては、Sc、Y、Ce、Tb、Yb等が挙げられ、仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。

以上の金属のうち好ましい金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が可能である。

上記アルカリ金属化合物としては、 Li_2O 、 Cs_2O 、 K_2O 等のアルカリ酸化物、LiF、NaF、CsF、KF等のアルカリハロゲン化物等が挙げられ、LiF、 Li_2O 、NaFのアルカリ酸化物又はアルカリフッ化物が好ましい。

上記アルカリ土類金属化合物としては、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合した $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）や、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ （ $0 < x < 1$ ）等が挙げられ、BaO、SrO、CaOが好ましい。

上記希土類金属化合物としては、 YbF_3 、 ScF_3 、 ScO_3 、 Y_2O_3 、 Ce_2O_3 、 GdF_3 、 TbF_3 等が挙げられ、 YbF_3 、

S c F₃、T b F₃が好ましい。

上記アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては、それぞれ金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも1つ含有するものであれば特に限定はない。

また、配位子にはキノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 β -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体などが好ましいが、これらに限定されるものではない。

還元性ドーパントの添加形態としては、上記界面領域に層状又は島状に形成すると好ましい。

形成方法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料や電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元ドーパントを分散する方法が好ましい。

分散濃度としてはモル比で有機物：還元性ドーパント＝100：1～1：100、好ましくは5：1～1：5である。

還元性ドーパントを層状に形成する場合は、界面の有機層である発光材料や電子注入材料を層状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは層の厚み0.1～15 nmで形成する。

還元性ドーパントを島状に形成する場合は、界面の有機層であ

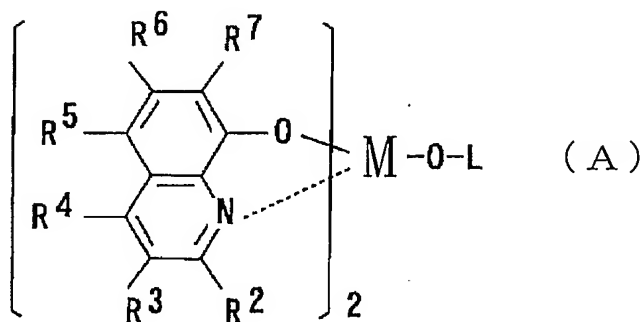
る発光材料や電子注入材料を島状に形成した後に、還元ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは島の厚み 0.05 ~ 1 nm で形成する。

また、本発明の有機 EL 素子における、主成分と還元性ドーパントの割合としては、モル比で主成分：還元性ドーパント = 5 : 1 ~ 1 : 5 であると好ましく、2 : 1 ~ 1 : 2 であるとさらに好ましい。

本発明の有機 EL 素子は、前記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素環誘導体を主成分として含有すると好ましい。

前記電子注入層に用いる電子輸送材料としては、分子内にヘテロ原子を 1 個以上含有する芳香族ヘテロ環化合物が好ましく用いられ、特に含窒素環誘導体が好ましい。

この含窒素環誘導体としては、例えば、一般式 (A) で表されるものが好ましい。



$\text{R}^2 \sim \text{R}^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、オキシ基、アミノ基、又は炭素数 1 ~ 40 の炭化水素基であり、これらは置換されていてもよい。

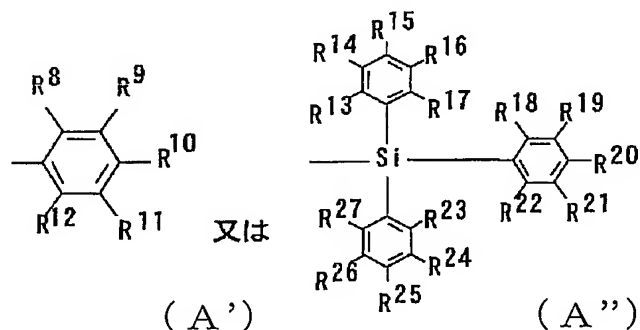
このハロゲン原子の例としては、前記と同様のものが挙げられる。また、置換されていても良いアミノ基の例としては、前記ア

ルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基と同様のものが挙げられる。

炭素数 1 ～ 40 の炭化水素基としては、置換もしくは無置換のアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基等が挙げられる。このアルキル基、アルケニル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、アラルキル基、アリールオキシ基の例としては、前記と同様のものが挙げられ、アルコキシカルボニル基は $-COOY'$ と表され、 Y' の例としては前記アルキル基と同様のものが挙げられる。

M は、アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga) 又はインジウム (In) であり、In であると好ましい。

一般式 (A) の L は、下記一般式 (A') 又は (A'') で表される基である。



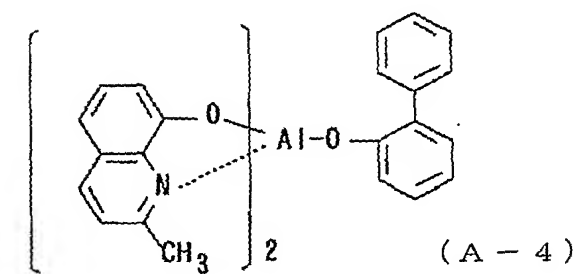
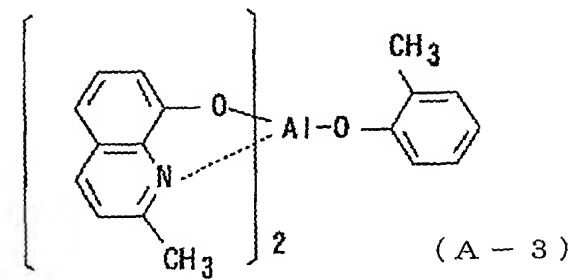
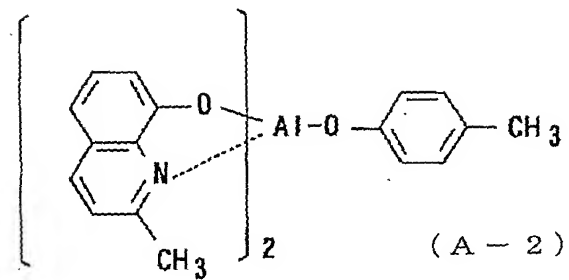
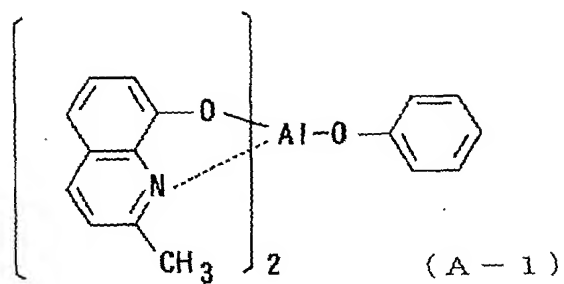
(式中、 $R^8 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。また、 $R^{13} \sim R^{27}$ は、それぞれ独立に、水素原子又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 の炭化水素基であり、互いに隣接する基が環状構造を形成していてもよい。)

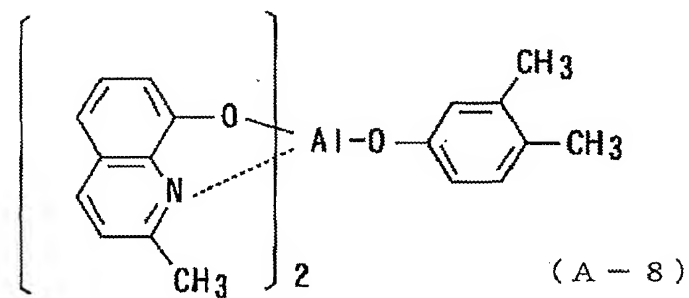
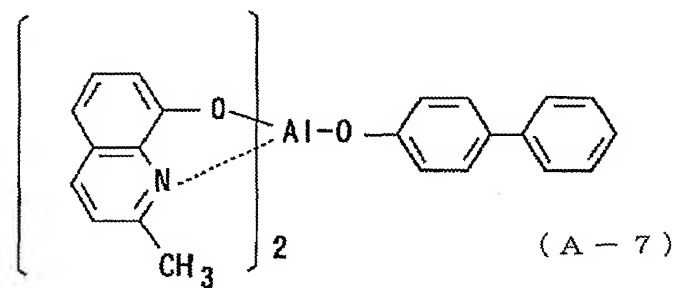
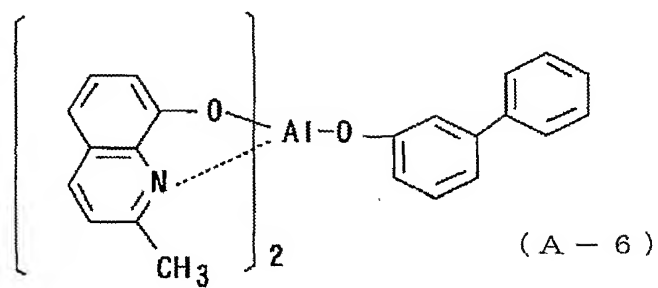
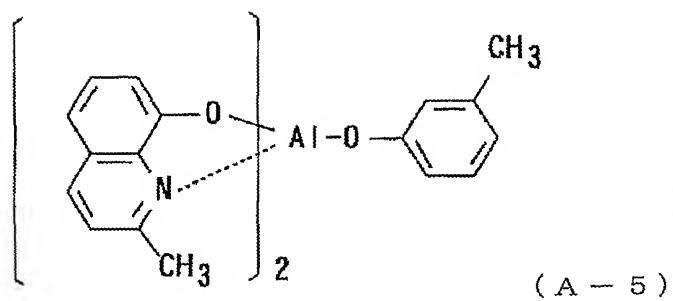
一般式 (A') 及び (A'') の $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ が示

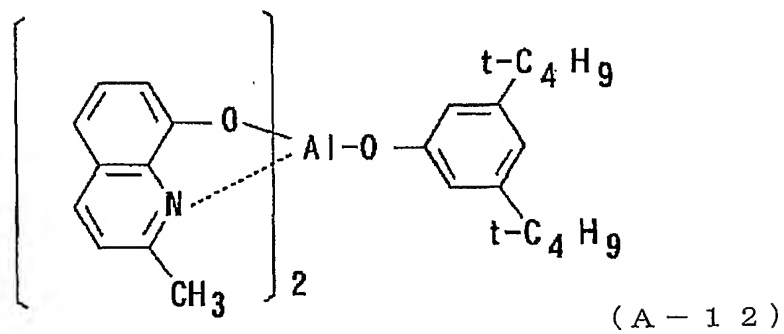
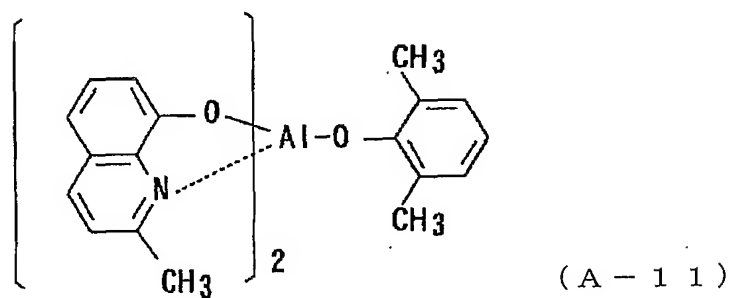
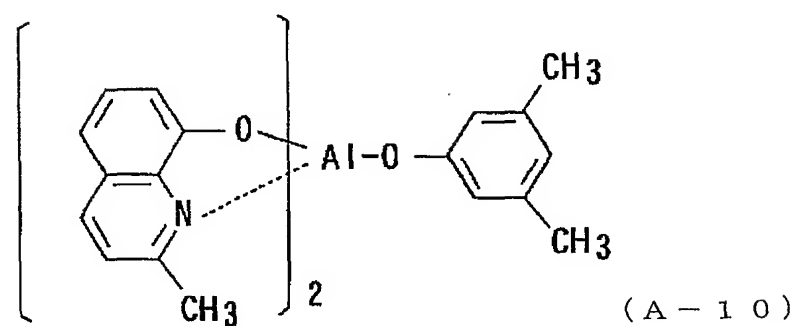
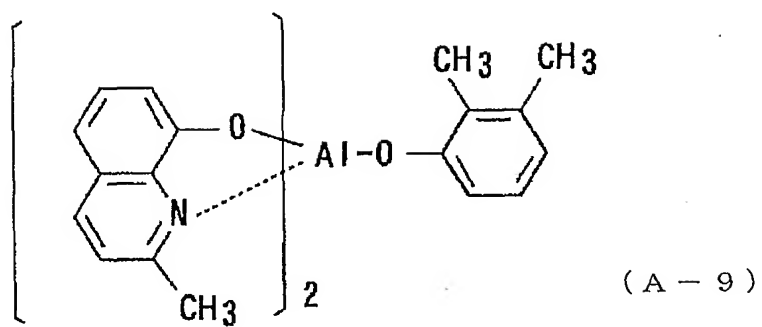
す炭素数 1 ～ 40 の炭化水素基としては、前記 $R^2 \sim R^7$ の具体例と同様のものが挙げられる。

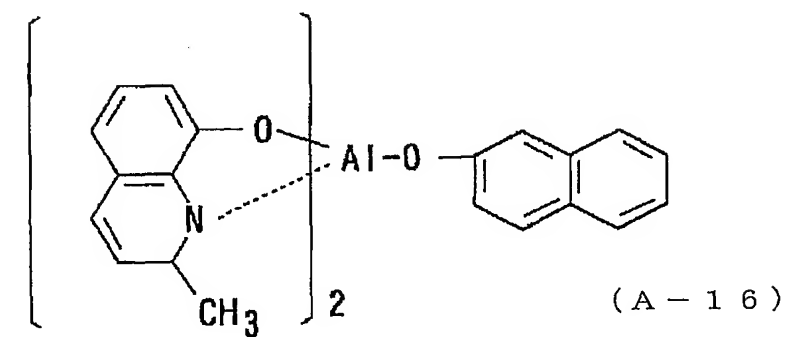
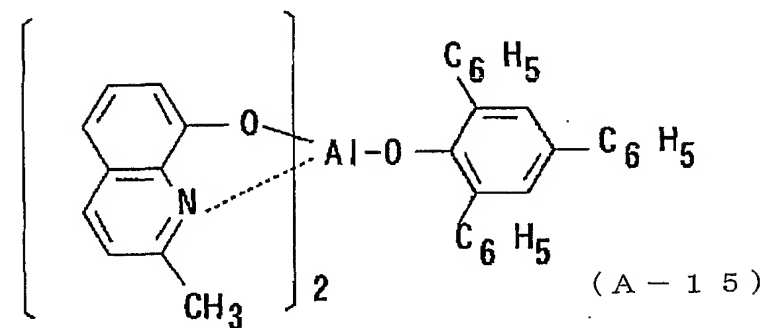
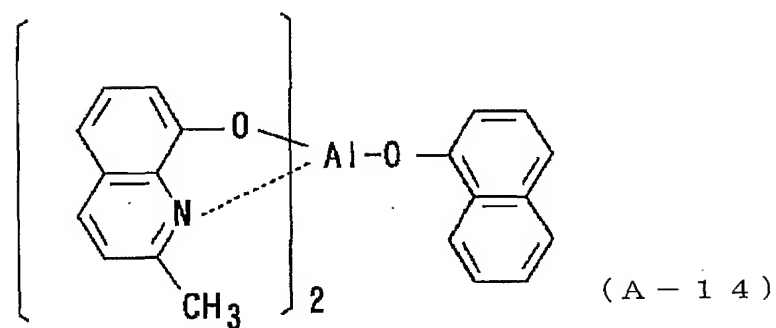
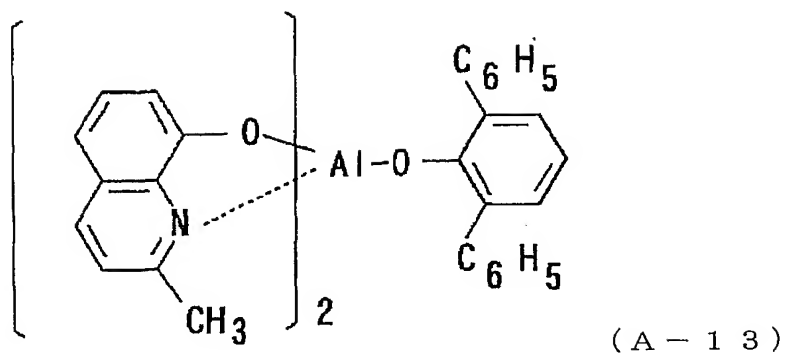
また、前記 $R^8 \sim R^{12}$ 及び $R^{13} \sim R^{27}$ の互いに隣接する基が環状構造を形成した場合の 2 価の基としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

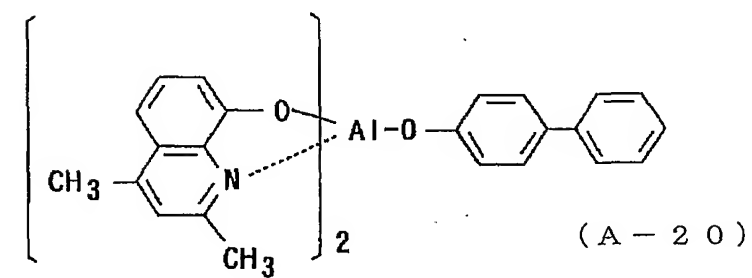
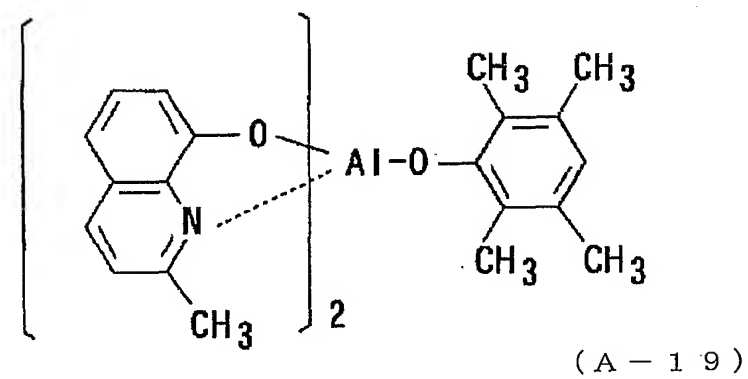
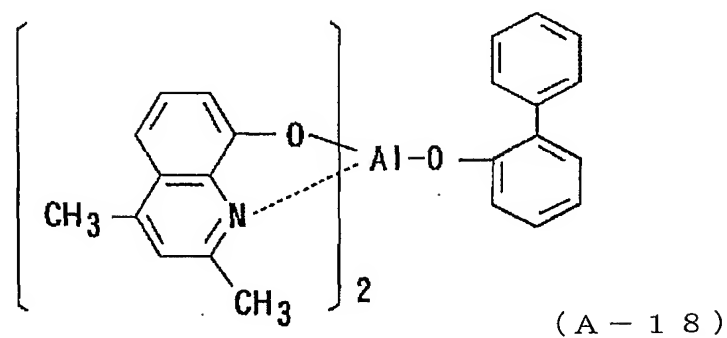
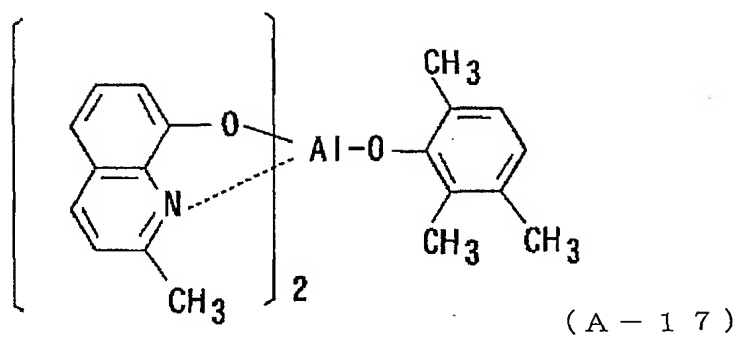
一般式 (A) で表される含窒素環の金属キレート錯体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

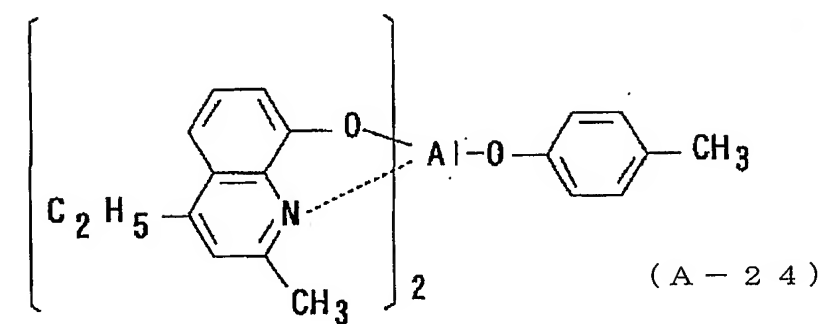
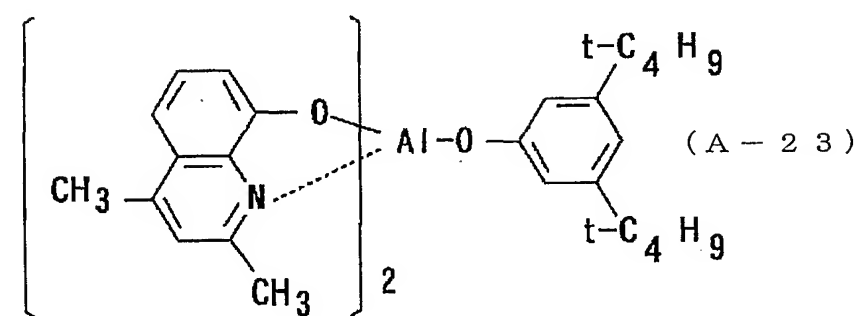
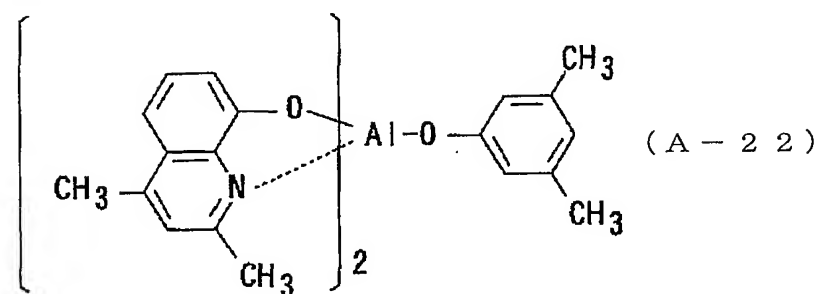
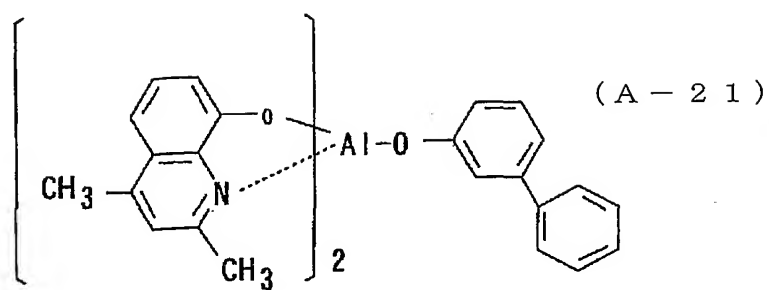


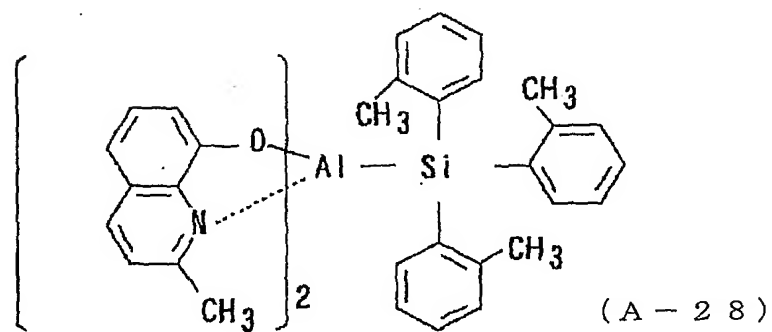
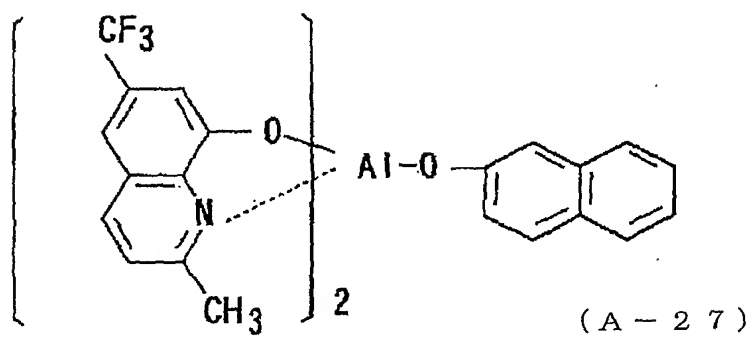
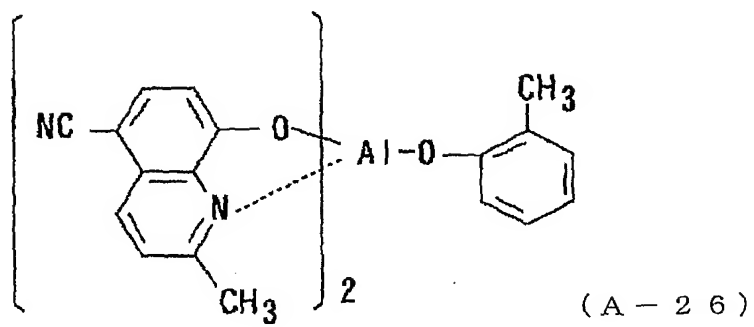
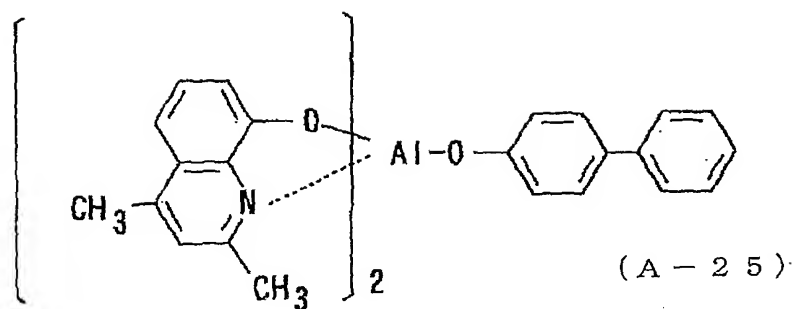


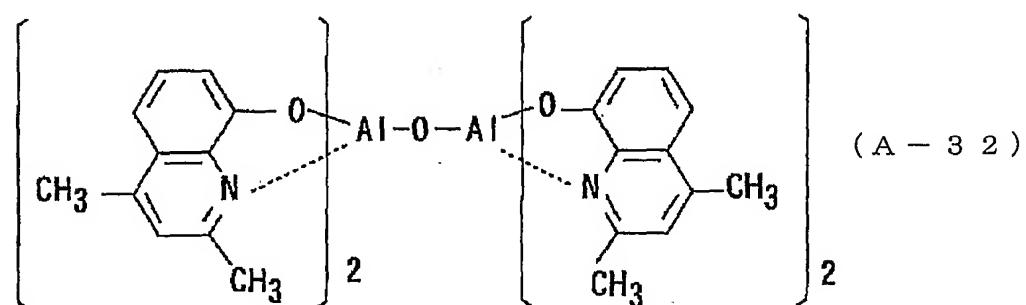
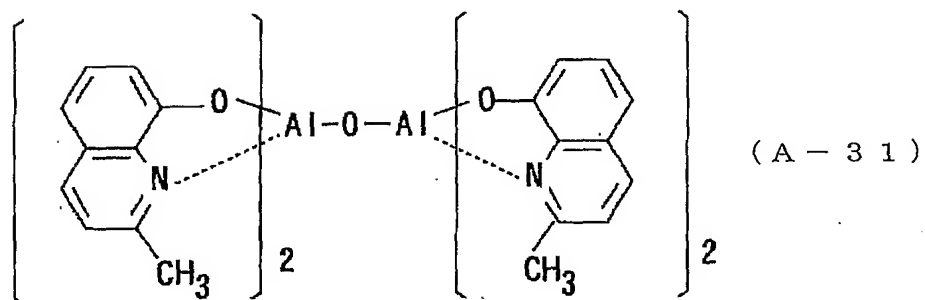
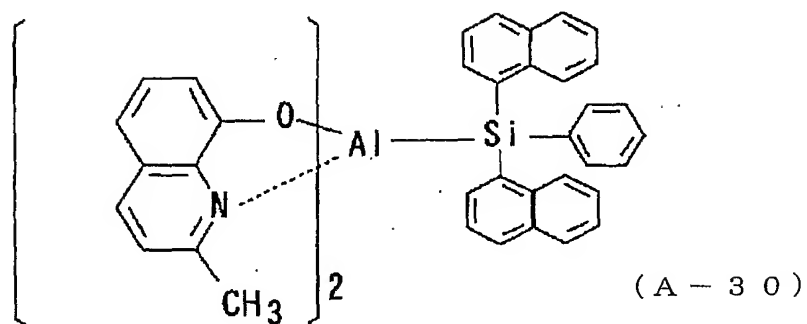
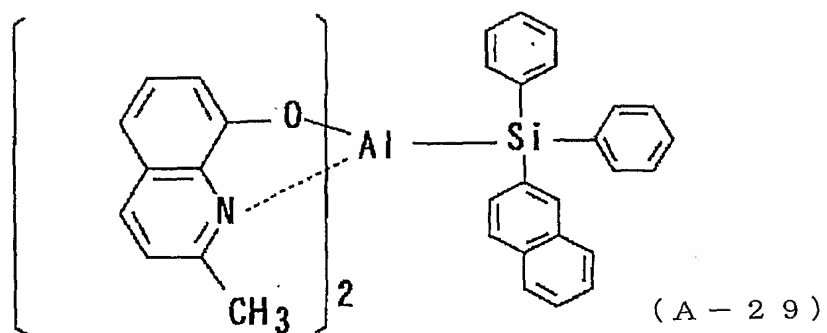


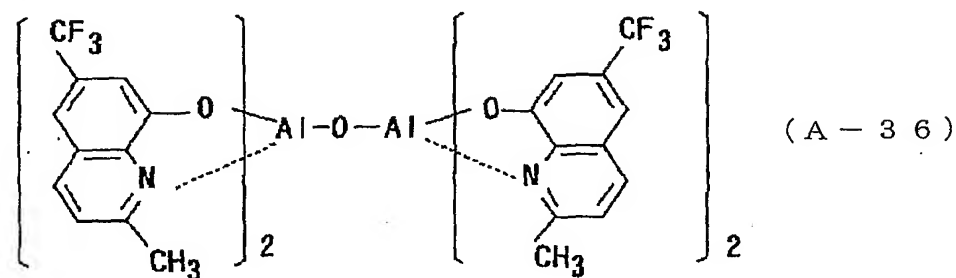
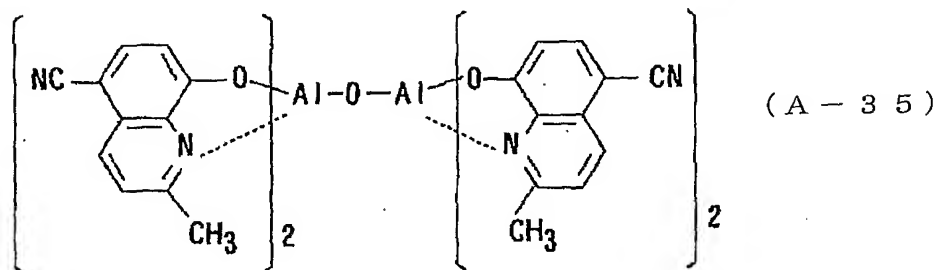
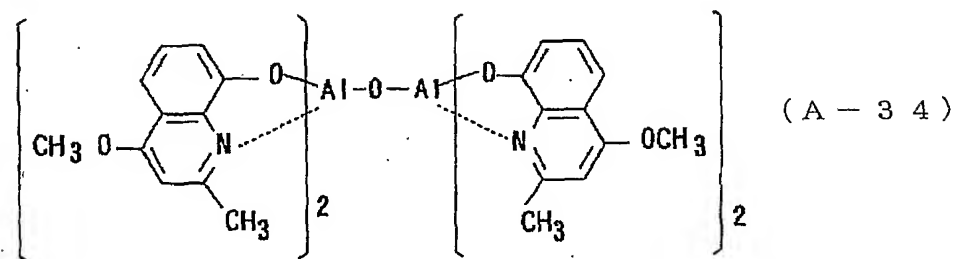
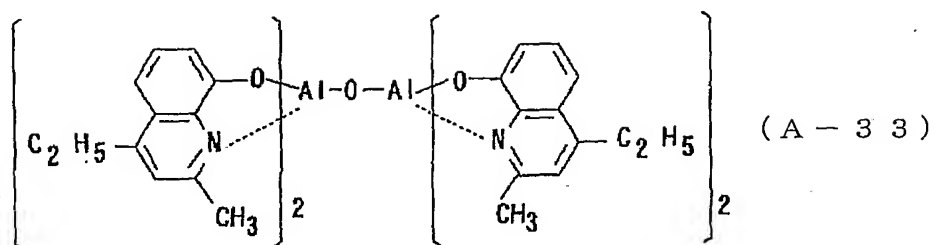






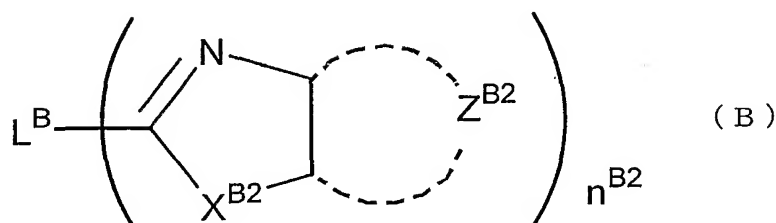






前記電子注入層の主成分である含窒素環誘導体としては、含窒素5員環誘導体も好ましく、含窒素5員環としては、イミダゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環等が挙げられ、含窒素5員環誘導体としては、ベンゾイミダゾール環、ベンゾトリアゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミ

ジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環であり、特に好ましくは、下記一般式（B）で表されるものである。

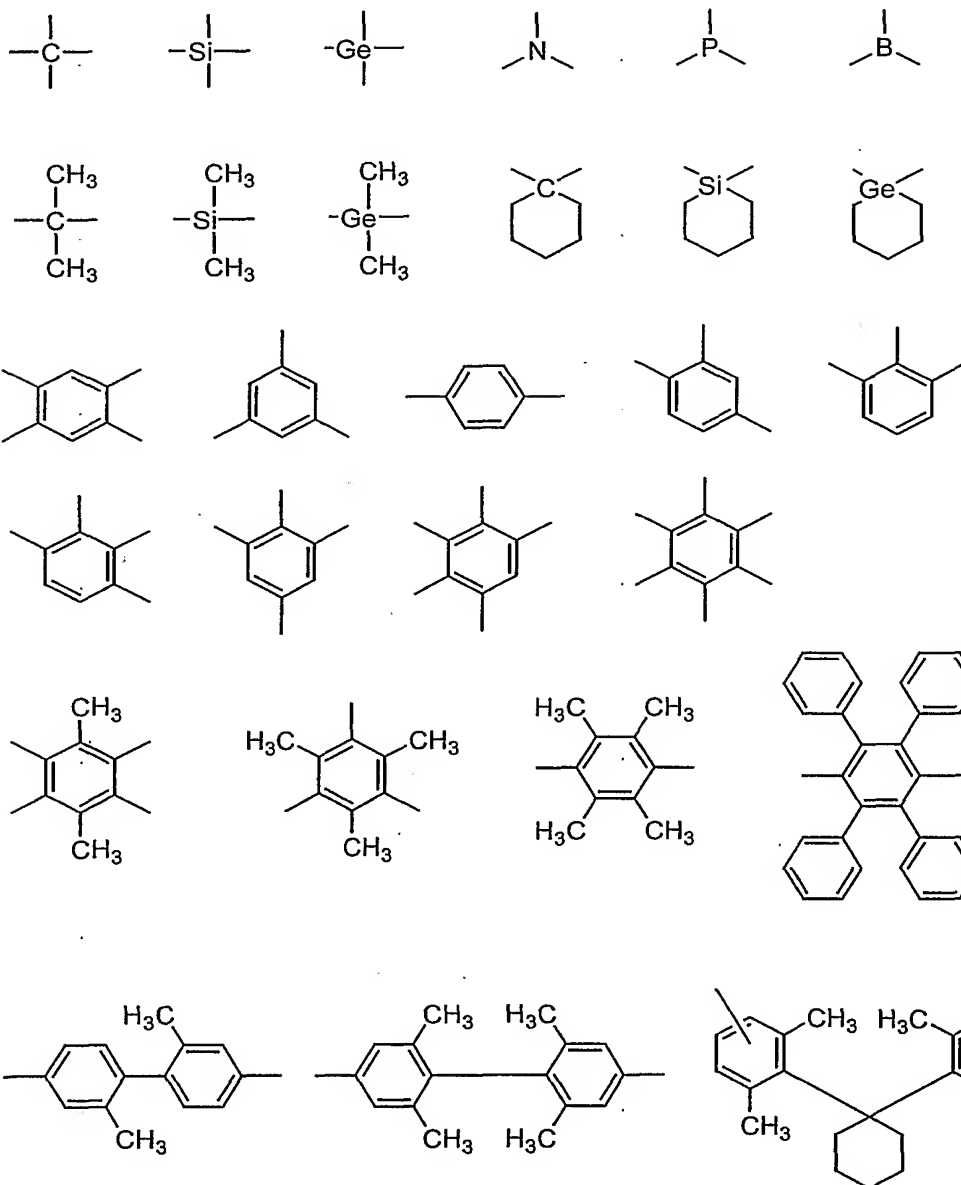


一般式（B）中、 L^B は二価以上の連結基を表し、例えば、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属（例えば、バリウム、ベリリウム）、芳香族炭化水素環、芳香族複素環等が挙げられ、これらのうち炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、アリール基、芳香族複素環基が好ましく、炭素原子、ケイ素原子、アリール基、芳香族複素環基がさらに好ましい。

L^B のアリール基及び芳香族複素環基は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、

アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

L^B の具体例としては、以下に示すものが挙げられる。



一般式 (B) における X^{B2} は、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $=N-R^{B2}$ を表す。 R^{B2} は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基を表す。

R^{B2} の脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、特に好ましくは炭素数 1 ~ 8 のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、*i* s o - プロピル、*t* e r t - ブチル、*n* - オクチル、*n* - デシル、*n* - ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルケニル基であり、例えば、ビニル、アリル、2 - ブテニル、3 - ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 20、より好ましくは炭素数 2 ~ 12、特に好ましくは炭素数 2 ~ 8 のアルキニル基であり、例えば、プロパルギル、3 - ペンチニル等が挙げられる。) であり、アルキル基であると好ましい。

R^{B2} のアリール基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、さらに好ましくは炭素数 6 ~ 12 のアリール基であり、例えば、フェニル、2 - メチルフェニル、3 - メチルフェニル、4 - メチルフェニル、2 - メトキシフェニル、3 - トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1 - ナフチル、2 - ナフチル等が挙げられる。

R^{B2} の複素環基は、単環又は縮合環であり、好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、さらに好ましくは炭素数 2 ~ 10 の複素環基であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。この複素環基の例としては、例えば、ピロリジン、

ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

R^{B2} で表される脂肪族炭化水素基、アリール基及び複素環基は置換基を有していてもよく、置換基としては前記 L^B で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

R^{B2} として好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール基又は複素環基であり、より好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数 6 ～ 30、より好ましくは炭素数 6 ～ 20、さらに好ましくは炭素数 6 ～ 12 のもの）又はアリール基であり、さらに好ましくは脂肪族炭化水素基（好ましくは炭素数 1 ～ 20、より好ましくは炭素数 1 ～ 12、さらに好ましくは炭素数 2 ～ 10 のもの）である。

X^{B2} として好ましくは $-O-$ 、 $=N-R^{B2}$ であり、より好ま

しくは $=N-R^{B2}$ であり、特に好ましくは $=N-R^{B2}$ である。

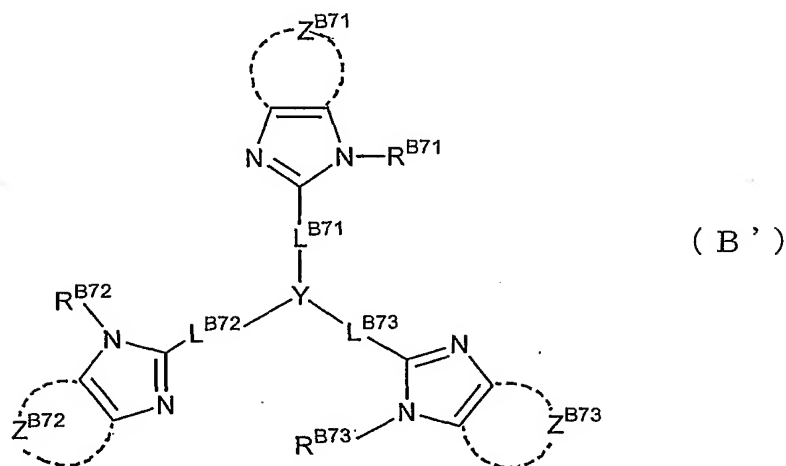
Z^{B2} は、芳香族環を形成するために必要な原子群を表す。 Z^{B2} で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族複素環のいずれでもよく、具体例としては、例えば、ベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テトラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

Z^{B2} で形成される芳香族環は、さらに他の環と縮合環を形成してもよく、置換基を有していてもよい。置換基としては前記 L^B で表される基の置換基として挙げたものと同様であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アル

コキシ基、芳香族複素環基である。

n^{B2} は、1～4の整数であり、2～3であると好ましい。

前記一般式(B)で表される含窒素5員環誘導体のうち、さらに好ましくは下記一般式(B')で表されるものが好ましい。



一般式(B')中、 R^{B71} 、 R^{B72} 及び R^{B73} は、それぞれ一般式(B)における R^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

Z^{B71} 、 Z^{B72} 及び Z^{B73} は、それぞれ一般式(B)における Z^{B2} と同様であり、また好ましい範囲も同様である。

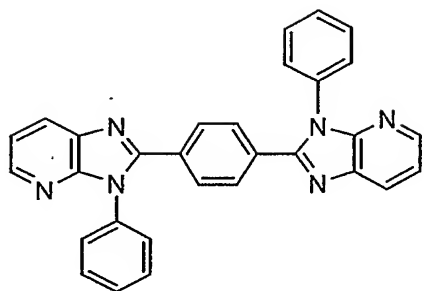
L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は、それぞれ連結基を表し、一般式(B)における L^B の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族複素環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は置換基を有していてもよく、置換基としては前記一般式(B)における L^B で表され

る基の置換基として挙げたものと同様であり、また好ましい置換基も同様である。

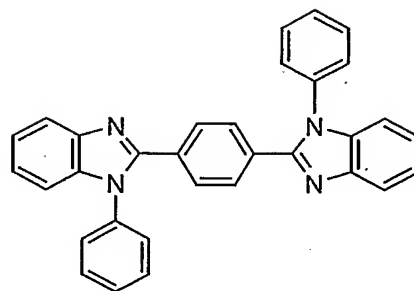
Yは、窒素原子、1, 3, 5-ベンゼントリイル基又は2, 4, 6-トリアジントリイル基を表す。1, 3, 5-ベンゼントリイル基は2, 4, 6-位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えば、アルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

一般式(B)又は(B')で表される含窒素5員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

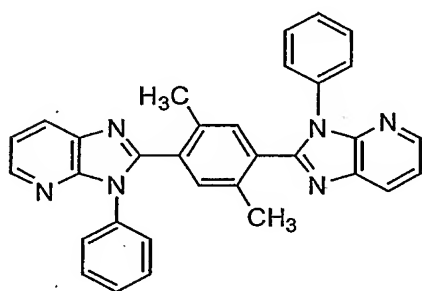
(B-1)



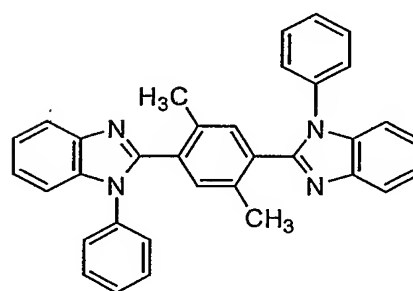
(B-5)



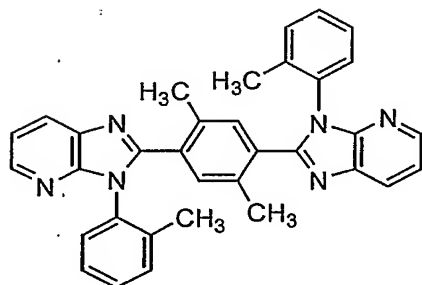
(B-2)



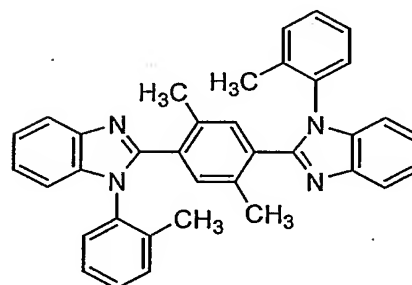
(B-6)



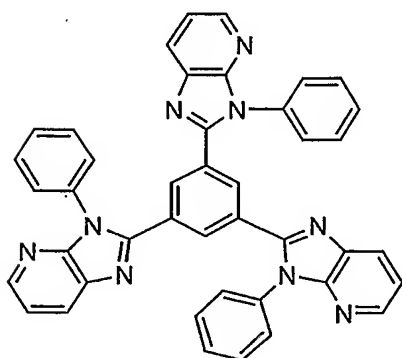
(B-3)



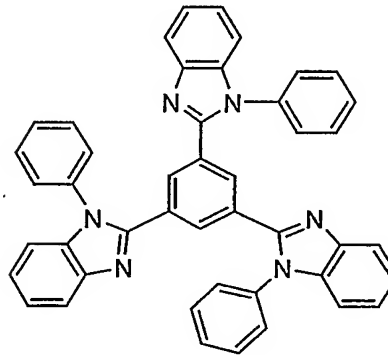
(B-7)



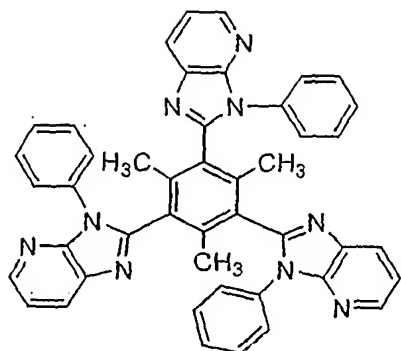
(B-4)



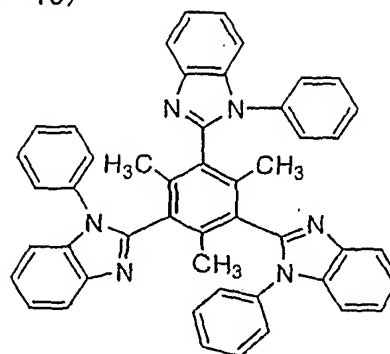
(B-8)



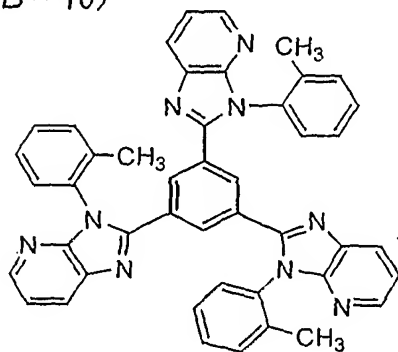
(B-9)



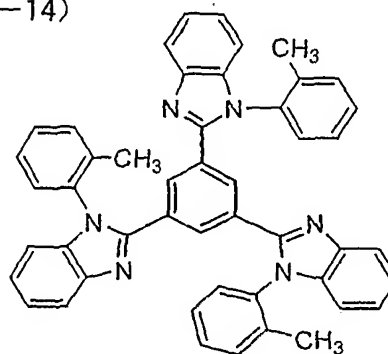
(B-13)



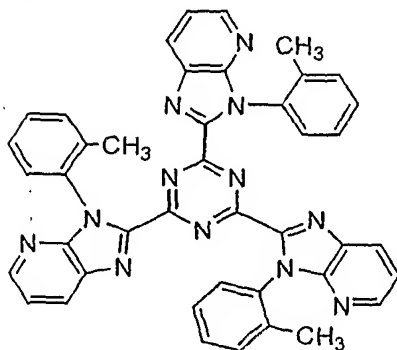
(B-10)



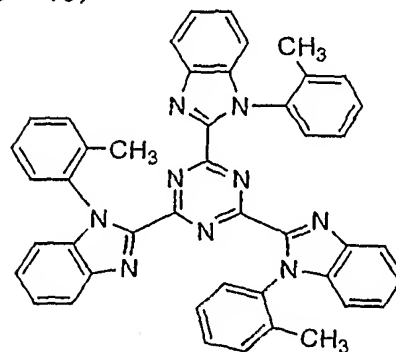
(B-14)



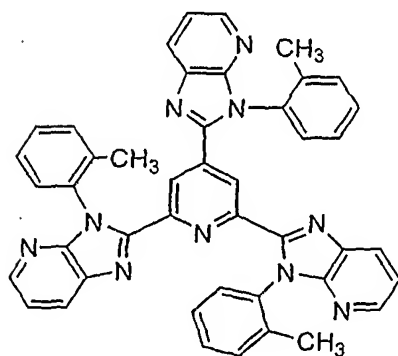
(B-11)



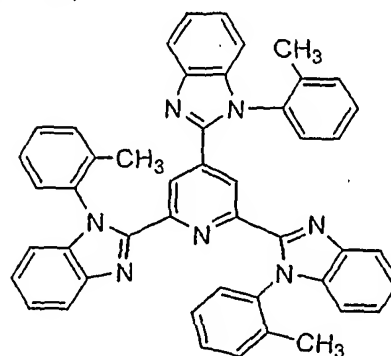
(B-15)



(B-12)



(B-16)



また、上記電子注入層の構成成分として、上記含窒素環誘導体の他に無機化合物として、絶縁体又は半導体を使用することが好ましい。

電子注入層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。

このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物およびアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも1つの金属化合物を使用するのが好ましい。

電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。

具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び NaO が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 等のフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、半導体としては、 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 及び Zn の少なくとも1つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。

また、電子注入層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質

の絶縁性薄膜であることが好ましい。

電子注入層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。

なお、このような無機化合物としては、上記アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

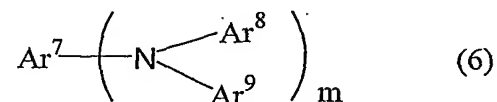
また、本発明における電子注入層は、前述の還元性ドーパントを含有していても好ましい。

発明の有機EL素子は、上記発光層と陽極との間に正孔輸送層を有し、該正孔輸送層がアリアルアミン誘導体を主成分として含有すると好ましい。

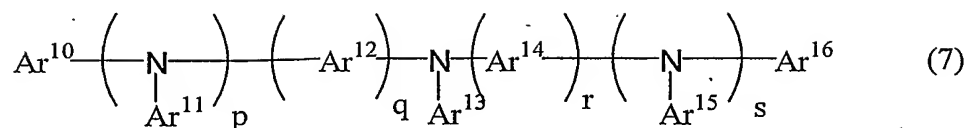
また、正孔輸送層に含有される正孔輸送材料としては、3重項エネルギーが2.52～3.7 eVであると好ましく、2.8～3.7 eVであるとさらに好ましい。

このような範囲の正孔輸送材料を用いることで、発光層の励起エネルギーが失活することを防ぐことができる。

上記正孔輸送材料としては、下記一般式(6)及び(7)で表されるものが好ましい。



(式中、 Ar^7 は、炭素数が6～40の芳香族基であり、 Ar^8 及び Ar^9 は、それぞれ水素原子又は炭素数が6～40の芳香族基であり、 m は1～6の整数である。)



(式中、 Ar^{10} 及び Ar^{16} は、炭素数が 6 ～ 40 の芳香族基であり、 $\text{Ar}^{11} \sim \text{Ar}^{15}$ は、それぞれ水素原子又は炭素数が 6 ～ 40 の芳香族基であり、縮合数 p 、 q 、 r 、 s は、それぞれ 0 又は 1 である。)

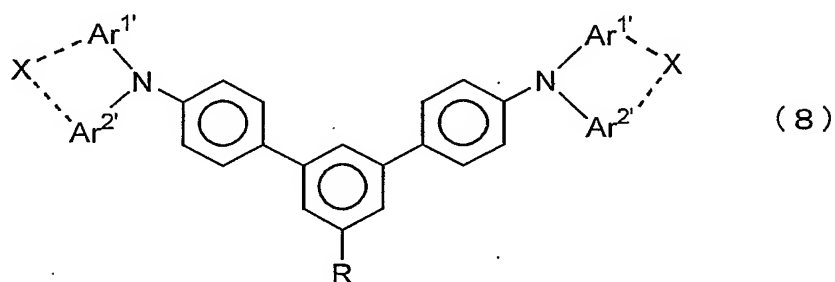
上記一般式 (6) 及び (7) において、炭素数が 6 ～ 40 の芳香族基のうち、好ましい核原子数 5 ～ 40 のアリール基としては、フェニル、ナフチル、アントラニル、フェナンスリル、ピレニル、コロニル、ビフェニル、ターフェニル、ピローリル、フラニル、チオフェニル、ベンゾチオフェニル、オキサジアゾリル、ジフェニルアントラニル、インドリル、カルバゾリル、ピリジル、ベンゾキノリル、フルオランテニル、アセナフトフルオランテニル等が挙げられる。

また、好ましい核原子数 5 ～ 40 のアリーレン基としては、フェニレン、ナフチレン、アントラニレン、フェナンスリレン、ピレニレン、コロニレン、ビフェニレン、ターフェニレン、ピローリレン、フラニレン、チオフェニレン、ベンゾチオフェニレン、オキサジアゾリレン、ジフェニルアントラニレン、インドリレン、カルバゾリレン、ピリジレン、ベンゾキノリレン、フルオランテニレン、アセナフトフルオランテニレン等が挙げられる。

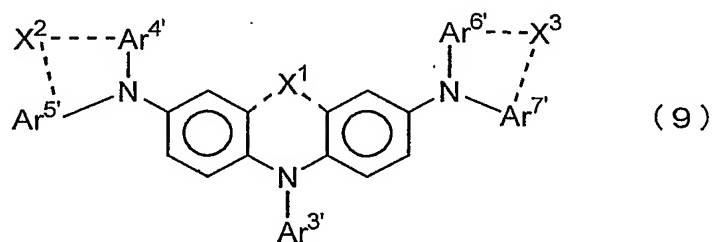
尚、炭素数が 6 ～ 40 の芳香族基は、さらに置換基により置換されていてもよく、好ましい置換基として、炭素数 1 ～ 6 のアルキル基 (エチル基、メチル基、*i*-プロピル基、*n*-プロピル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、炭素数 1 ～ 6 のアルコキシ

基（エトキシ基、メトキシ基、i-プロポキシ基、n-プロポキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロペントキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、核原子数 5 ～ 40 のアリール基、核原子数 5 ～ 40 のアリール基で置換されたアミノ基、核原子数 5 ～ 40 のアリール基を有するエステル基、炭素数 1 ～ 6 のアルキル基を有するエステル基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子が挙げられる。

更に、3 重項エネルギーが 2.8 eV 以上の正孔輸送材料としては、下記一般式 (8) 及び (10) で表されるものが好ましい。



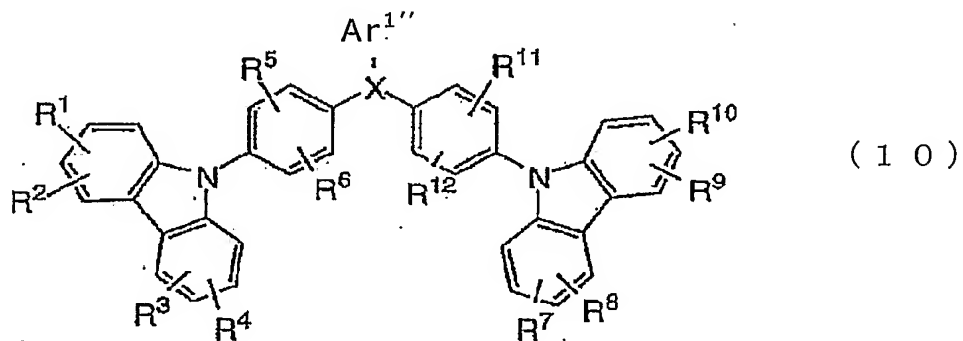
(式中、 $Ar^{1'}$ 、 $Ar^{2'}$ は、炭素数 1 ～ 6 のアルキル基、アルコキシ基又はフェニル基によって置換されていてもよい核炭素数 6 ～ 18 のアリール基であり、 R は炭素数 4 ～ 6 のアルキル基又はアルコキシ基または核炭素数 6 ～ 18 のアリール基である。 X は、単結合， $-O-$ 又は $-S-$ で表される連結基を示し、 X はあっても、なくてもよい。)



(式中、 $Ar^{3'}$ は、置換基を有する若しくは有しない核炭素数

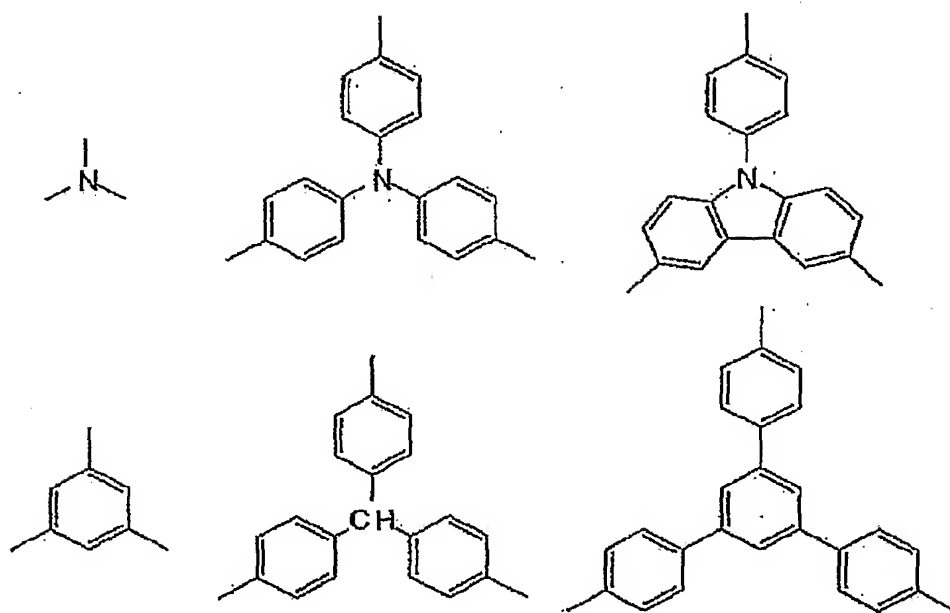
6～18のアリール基、 $Ar^{4'}$ ～ $Ar^{7'}$ は、それぞれ置換基を有する若しくは有しない核炭素数6～18のアリーレン基を示し、 X^1 は、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-(CH_2)_n-$ (n は1～6の整数)又は $-C(CH_3)_2-$ である連結基を示し、これらの連結基はあってもよく、なくてもよく、 X^2 及び X^3 は、それぞれ単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-(CH_2)_n-$ (n は1～6の整数)又は $-C(CH_3)_2-$ である連結基を示し、それらは同一でも異なってもよい。))

一般式(8)及び(9)における $Ar^{1'}$ ～ $Ar^{7'}$ 、 R 、 X 及び X^1 ～ X^3 の示す各基並びに置換基の具体例としては、カルバゾリル基、炭素数18～60アリールカルバゾールイル基、アザカルバゾリル基、炭素数18～60のアリールアザカルバゾールイル基、アクリジニル基、フェノキサジニル基又はジベンゾアゼピニル基であり置換されていてもよい。置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～60)の複素環基である。2価又は3価の置換もしくは無置換の炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～60の複素環基である。置換もしくは無置換のベンゼン残基、置換もしくは無置換のチオフェン残基、置換もしくは無置換のトリアゾール残基、置換もしくは無置換のフルオレン残基又は置換もしくは無置換のスピロビフルオレン残基である。

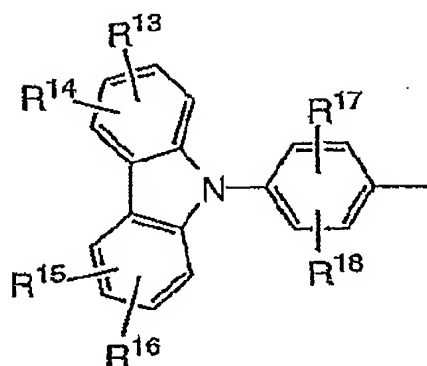


[式中、 $R^1 \sim R^{12}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シアノ基、アミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボギシル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、アリールオキシ基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環基又は芳香族複素環基を表わし、 R^1 と R^2 、 R^3 と R^4 、 R^5 と R^6 、 R^7 と R^8 、 R^9 と R^{10} 、 R^{11} と R^{12} はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成してもよい。

Xは以下に示す3価の連結基を示し、



"Ar¹"は、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環基、芳香族複素環基又は以下に示す一般式(11)のいずれかで表される。



(1 1)

(式中、 $R^{13} \sim R^{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルケニル基、シアノ基、置換基を有していてもよいアミノ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、アルコキシ基、アルキルアミノ基、アラルキルアミノ基、ハロアルキル基、水酸基、アリールオキシ基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表わし、 R^{13} と R^{14} 、 R^{15} と R^{16} 、 R^{17} と R^{18} はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成してもよい。)

一般式(10)における $Ar^{1'}$ 、 $R^1 \sim R^{18}$ の示す各基並びに置換基の具体例としては、カルバゾリル基、炭素数18～60アリールカルバゾールイル基、アザカルバゾリル基、炭素数18～60のアリールアザカルバゾールイル基、アクリジニル基、フェノキサジニル基又はジベンゾアゼピニル基であり置換されていてもよい。置換もしくは無置換の炭素数6～60のアリール基又は置換もしくは無置換の炭素数3～60の複素環基である。2価又は3価の置換もしくは無置換の炭素数6～60の芳香族炭化水素基又は置換もしくは無置換の炭素数3～60の複素環基である。置換もしくは無置換のベンゼン残基、置換もしくは無置換のチオフェン残基、置換もしくは無置換のトリアゾール残基、置換もしくは無置換のフルオレン残基又は置換もしくは無置換

のスピロビフルオレン残基である。

本発明において、有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層または発光層に注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。

本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NE SA）、金、銀、白金、銅等が適用できる。

また陰極としては、電子注入層又は発光層に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。

陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金等が使用できる。

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。

従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。

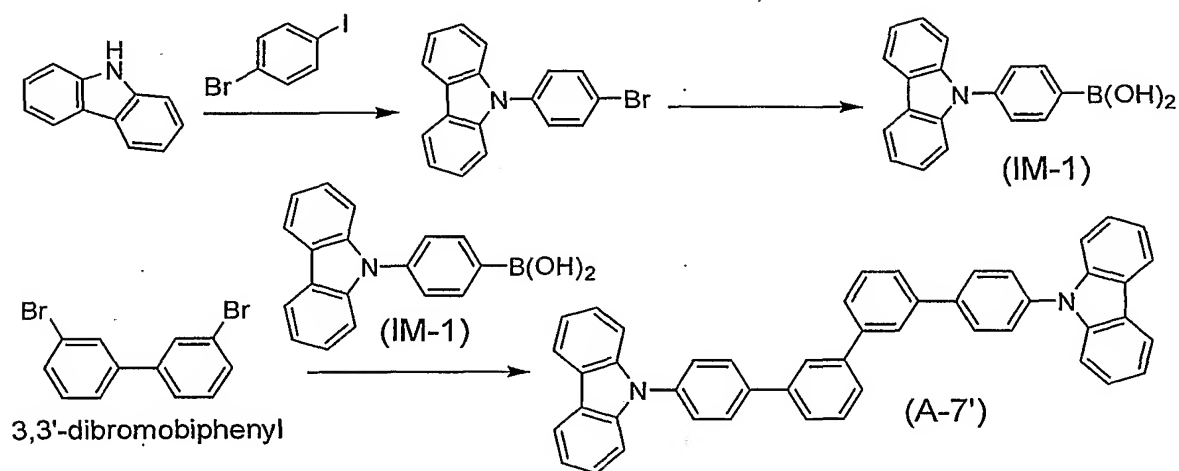
本発明の有機EL素子に用いる、上記一般式（1）で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が好ましい。

实施例

次に、合成例及び実施例を用いて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

合成例 1 [化合物 (A-7') の合成]



(1) 中間体 (IM-1) の合成

4-ブロモヨードベンゼン 25.4 g (90 mmol)、カルバゾール 10.0 g (60 mmol)、沃化銅 0.1 g (0.5 mmol)、磷酸カリウム 26.7 g (126 mmol) を 1,4-ジオキサン 70 ml に懸濁し、トランス-1,2-シクロヘキサジアミン 0.7 ml (6 mmol) を加え、アルゴン雰囲気下、14 時間加熱環流した。

反応溶液を室温まで冷却し、塩化メチレン及び水を加え、二層に分離した後、有機層を 5 % 塩酸水溶液及び水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

有機溶媒を減圧留去後、エタノール 50 ml を加え、析出した結晶を濾過し、エタノール及びノルマルヘキサンで順次洗浄し、*p*-ブロモフェニルカルバゾール 17.8 g (収率 92%) を得

た。

p-ブロモフェニルカルバゾール 8.0 g (25 mmol) をトルエン 50 ml とエーテル 50 ml の混合溶液に溶解し、アルゴン雰囲気下 -40 °C でノルマルブチルリチウムヘキサン溶液 (1.6 M) 21 ml (32 mmol) を加え、-40 °C から 0 °C で 1 時間攪拌した。

次に、反応溶液を -70 °C まで冷却し、ホウ酸トリイソプロピル 17 ml (74 mmol) をエーテル 25 ml に希釈した溶液を滴下し、-70 °C で 1 時間攪拌した後、室温まで昇温して 6 時間攪拌した。

終夜放置後、更に反応溶液に 5 % 塩酸 70 ml を滴下し、室温で 45 分間攪拌した。

反応溶液が二層に分離した後、有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

有機溶媒を減圧留去後、析出した結晶を濾過し、トルエン-ノルマルヘキサン混合溶媒で洗浄し、中間体 (IM-1) 4.0 g (収率 56 %) を得た。

(2) 化合物 (A-7') の合成

3, 3'-ジブロモビフェニル 2.0 g (6.4 mmol)、中間体 (IM-1) 3.7 g (12.8 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 300 mg (0.25 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 60 ml、炭酸ナトリウム水溶液 [炭酸ナトリウム 4.0 g (38 mmol) を水 35 ml に溶解] をアルゴン雰囲気下 200 ml のフラスコに入れ、78 °C で 18 時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄して 4.0 g の粗結晶を得た。

これをシリカゲルカラムで精製後、トルエンにて再結晶し、1.2 g の淡黄結晶を得た。

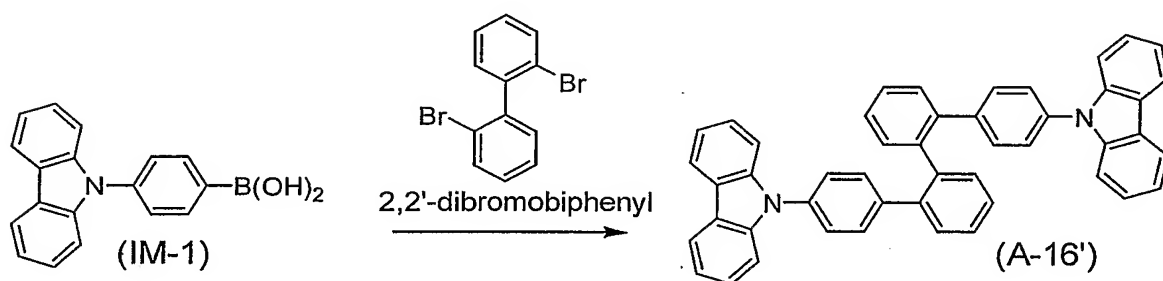
次に、これを 400°C 、 $3.0 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ で昇華精製し、精製結晶 (A-7') 820 mg (1.3 mmol 、収率 20%) を得た。FD-MS (フィールドディソープションマススペクトル) の測定結果を以下に示す。

FD-MS : calcd for $C_{48}H_{32}N_2=636$, found, $m/z=636(100)$

また、HPLC（カラム：ODS-3V、移動相：アセトニトリル／テトラヒドロフラン＝85／15、検出UV波長：254nm、温度：40℃）分析の結果、このものの純度は、99.5%であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

合成例 2 [化合物 (A-16') の合成]



500 ml のフラスコにアルゴン雰囲気下、2, 2'-ジブロモビフェニル 5.0 g (16.3 mmol)、中間体 (IM-1) 10.1 g (35.3 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 740 mg (0.64 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 150 ml、炭酸ナトリウム水溶液〔炭酸ナトリウム 10.2 g (96 mmol) 水 120 ml に溶解〕を入れ、78℃で15時間攪拌した。

その後室温まで冷却し、析出晶をろ別した。

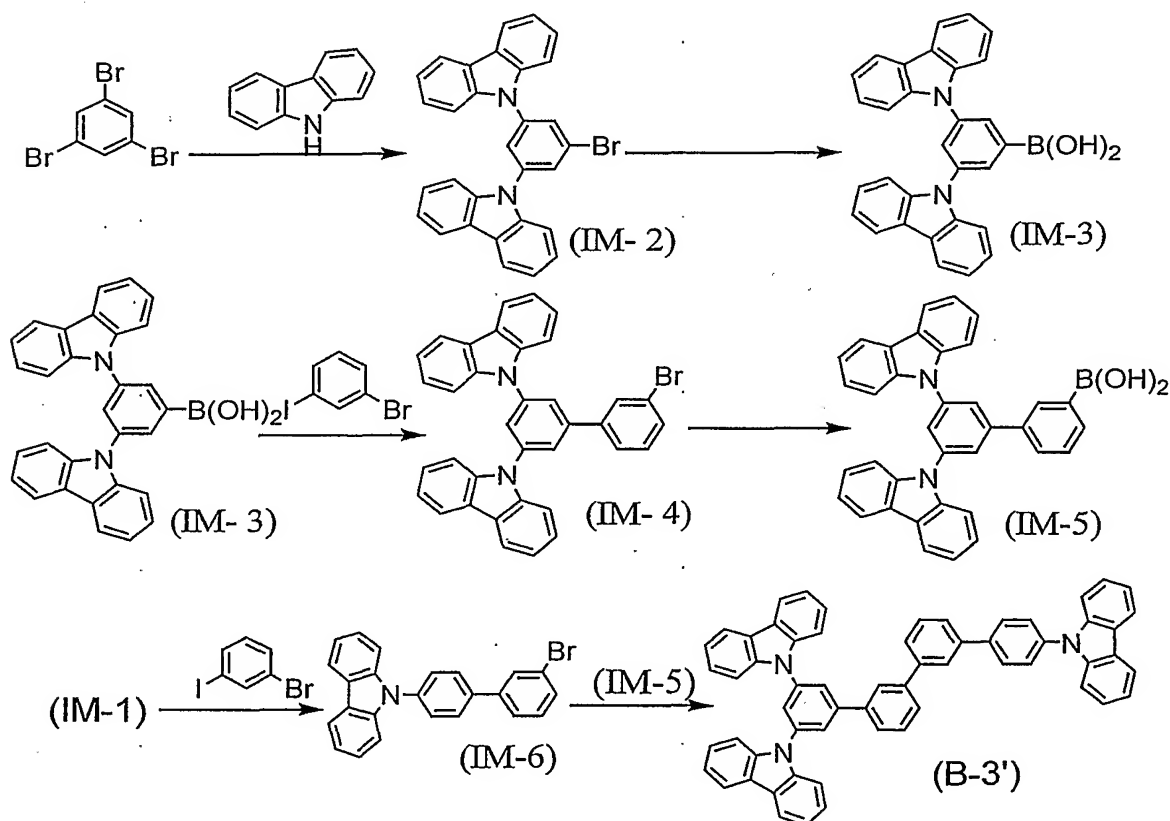
水、メタノール及びヘキサンで順に析出晶を洗浄し、その後トルエンを用いた3回の再結晶を経て、化合物(A-16') 6.9 g (10.8 mmol、収率68%)を得た。FD-MSの測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{48}H_{32}N_2=636$, found, $m/z=636(100)$

また、HPLC (カラム: ODS-3 V、移動相: アセトニトリル/テトラヒドロフラン=85/15、検出UV波長: 254 nm、温度: 40℃) 分析の結果、このものの純度は、99.9%であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

合成例3 [化合物(B-3')の合成]



(1) 中間体 (IM-2) の合成

2 リットルの三つ口フラスコにアルゴン雰囲気下、1, 3, 5-トリブロモベンゼン 70 g (0.22 mol), カルバゾール 73.6 g (0.44 mol)、沃化銅 4.2 g (2.2 mmol)、燐酸酸カリウム 187 g (0.88 mol)、トランス-1, 2-シクロヘキサンジアミン 25 g (0.22 mol) 及び 1, 4-ジオキサン 700 ml を入れ、104℃で16時間攪拌した。

その後、室温まで冷却し、水 600 ml 加えて塩化メチレンで抽出後、有機層を水で洗浄し、次に無水硫酸マグネシウムで乾燥後、ろ別し、スラリー状態になるまで減圧濃縮した。

得られた固体をろ過し、ろ液を更に減圧濃縮した。

残渣トルエン 300 ml に溶かし、リカゲルカラムにて精製し、22 g の中間体 (IM-2) (45 mmol, 収率 20%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{30}H_{19}BrN_2$ =487, found, m/z =488(100), 486(95)

(2) 中間体 (IM-3) の合成

300 ml の三つ口フラスコに、アルゴン雰囲気下、上記 (IM-2) 9.0 g (18 mmol)、脱水トルエン 100 ml、脱水ジエチルエーテル 100 ml を入れ、攪拌しながら、-10℃に冷却した。

そこへ、ノルマルブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 14.8 ml (23 mmol) を10分かけて滴下した。

更に、2時間攪拌後、ホウ酸トリエイソプロピル 10.4 g (56 mmol) をエーテル 25 ml に希釈した溶液を20分かけて滴下し、室温で8時間攪拌した。

その後、0℃に冷却し、濃塩酸 4 ml を水 100 ml で希釈し

た希塩酸を添加し、酸性とした。

次に、100 ml の水及び飽和食塩水で順に洗浄し、有機層を無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。

この溶液をろ過後、減圧濃縮し、得られた粘性固体をTHF（テトラヒドロフラン）30 ml に溶解し、ヘキサン100 ml を加え、減圧下析出晶をろ過した。

更に、ろ液を濃縮し、得られた粘性物をTHFに溶解し、ヘキサンを加えて同様の操作をおこない、合計5.9 g の中間体（IM-3）（13 mmol，収率71%）を得た。FD-MSの測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{30}H_{21}BN_2O_2=452$, found, $m/z=452(100)$

（3）中間体（IM-4）の合成

300 ml の三つ口フラスコにアルゴン雰囲気下、1-ブromo-3-ヨードベンゼン5.0 g（18 mmol）、中間体（IM-3）8.1 g（18 mmol）、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム（0） $[Pd(PPh_3)_4]$ 414 mg（0.36 mmol）、ジメトキシエタン100 ml 及び炭酸ナトリウム10重量%水溶液58 g（54 mmol）を入れ、80℃で10時間攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、トルエン100 ml を加え、水及び飽和食塩水で順に有機層を洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、ろ過し、有機層を減圧濃縮し、黄褐色の固体を得た。

これを、シリカゲルカラムで精製し、中間体（IM-4）9.2 g（16 mmol，収率88%）を得た。FD-MSの測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{37}H_{27}BrN_2=579$, found, $m/z=580(100)$, 578 (90)

(4) 中間体 (IM-5) の合成

300 ml の三つ口フラスコに、アルゴン雰囲気下、中間体 (IM-4) 6.0 g (10 mmol)、脱水トルエン 70 ml 及び脱水ジエチルエーテル 70 ml を入れ、攪拌しながら -10°C に冷却した。

そこへ、ノルマルブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 7.5 ml (12 mmol) を 10 分かけて滴下した。

更に、2 時間攪拌後、ホウ酸トリイソプロピル 5.6 g (30 mmol) をエーテル 20 ml に希釈した溶液を 10 分かけて滴下し、室温で 6 時間攪拌した。

その後、 0°C に冷却し、濃塩酸 4 ml を水 100 ml で希釈した希塩酸を添加し、酸性とした。

次に、70 ml の水及び飽和食塩水で順に洗浄し、有機層を無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。

この溶液をろ過後、減圧濃縮し、得られた粘性固体を THF 20 ml に溶解し、ヘキサン 70 ml を加え、減圧下析出晶をろ過した。

更に、ろ液を濃縮し、得られた粘性物を THF に溶解し、ヘキサンを加えて同様の操作を行ない、合計 4.1 g の中間体 (IM-5) (7.5 mmol, 収率 75%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $\text{C}_{37}\text{H}_{29}\text{BN}_2\text{O}_2=544$, found, $m/z=544(100)$

(5) 中間体 (IM-6) の合成

300 ml の三つ口フラスコにアルゴン雰囲気下、1-ブロモ-3-ヨードベンゼン 5.0 g (18 mmol)、中間体 (IM-1) 5.2 g (18 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) [$\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$] 414 mg (0.

36 mmol)、ジメトキシエタン100 ml、炭酸ナトリウム10重量%水溶液58 g (54 mmol)を入れ、80℃で12時間攪拌した。

反応終了後、室温まで冷却し、トルエン100 mlを加え、水及び飽和食塩水で順に有機層を洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、ろ過し、有機層を減圧濃縮し、黄褐色の固体を得た。

これを、シリカゲルカラムで精製し、中間体(IM-6) 5.1 g (13 mmol, 収率72%)を得た。FD-MSの測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{24}H_{16}BrN$ =398, found, m/z =399(100), 397(93)

(6) 化合物(B-3')の合成

100 ml フラスコにアルゴン雰囲気下、室温で上記(IM-6) 2.5 g (6.3 mmol)、中間体(IM-5') 3.7 g (6.9 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0) [$Pd(PPh_3)_4$] 145 mg (0.13 mmol)、ジメトキシエタン50 ml及び炭酸ナトリウム水溶液[炭酸ナトリウム2 g (19 mmol)を水10 mlに溶解]を入れ、78℃にて15時間攪拌した。

反応終了後、室温に冷やし、析出晶をろ別した。

得られた析出晶を水、メタノール及びヘキサンで洗浄し、結晶3.7 gを得た。

次に、トルエンを用いて3回再結晶を行い、化合物(B-3') 2.8 g (3.5 mmol, 収率5.5%)を得た。FD-MSの測定結果を以下に示す。

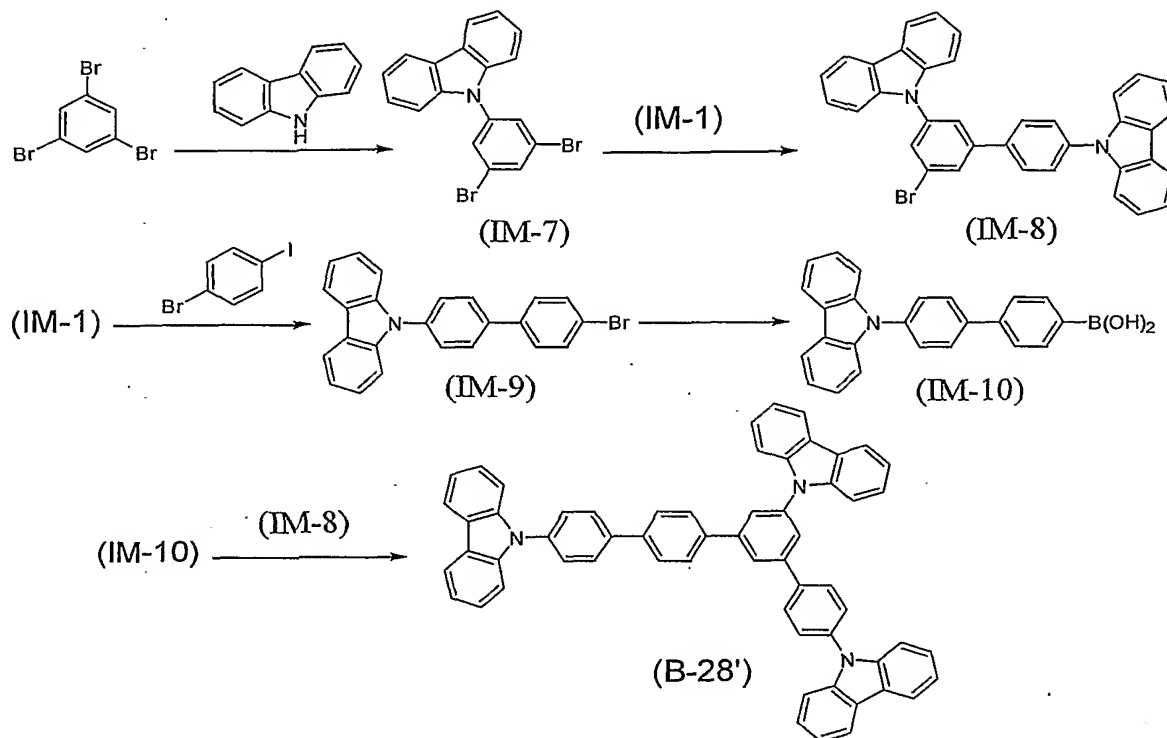
FD-MS: calcd for $C_{60}H_{39}N_3$ =801, found, m/z =801(100)

また、HPLC (カラム: ODS-3 V、移動相: アセトニト

リル／テトラヒドロフラン＝８５／１５、検出ＵＶ波長：２５４
nm、温度：４０℃）分析の結果、このものの純度は、９９．５％
であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

合成例４〔化合物（Ｂ－２８'）の合成〕



（１）中間体（ＩＭ－７）の合成

５００ｍｌの三口フラスコにアルゴン雰囲気下、１，３，５
－トリブロモベンゼン３０ｇ（９４ｍｍｏｌ）、カルバゾール１
８．８ｇ（６０ｍｍｏｌ）、沃化銅０．６ｇ（３ｍｍｏｌ）、燐
酸酸カリウム２５．５ｇ（１２０ｍｍｏｌ）、トランス－１，２
－シクロヘキサンジアミン３．４ｇ（３０ｍｍｏｌ）及び１，４
－ジオキサン２００ｍｌを入れ、１０５℃で攪拌しながら１６時
間加熱還流した。

その後、室温まで冷却し、水 1.50 ml を加えて塩化メチレンで抽出後、有機層を水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、ろ別し、ラリー状態になるまで減圧濃縮した。

得られた固体をろ過し、ろ液を更に減圧濃縮した。

残渣をトルエンに溶かし、シリカゲルカラムにて精製し、中間体 (IM-7) 1.7 g (4.2 mmol、収率 71%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{18}H_{11}Br_2N=401$, found, $m/z=401(M^+, 100)$

(2) 中間体 (IM-8) の合成

300 ml のフラスコにアルゴン気流下、上記 (IM-7) 5.0 g (12.5 mmol)、中間体 (IM-1) 3.9 g (13.7 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 300 mg (0.25 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 60 ml、炭酸ナトリウム水溶液 [炭酸ナトリウム 4.0 g (38 mmol) を水 35 ml に溶解] を入れ、78 °C で 14 時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄して粗結晶 6.1 g を得た。

これを、シリカゲルカラムで精製後、トルエンを用いて再結晶し、中間体 (IM-8) 5.2 g (9.2 mmol、収率 74%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{36}H_{23}BrN_2=562$, found, $m/z=562(M^+, 100)$

(3) 中間体 (IM-9) の合成

300 ml のフラスコにアルゴン気流下、4-ヨードブロムベンゼン 5.5 g (19 mmol)、中間体 (IM-1) 5.6 g (19 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 450 mg (0.39 mmol)、DME (ジメトキシ

エタン) 120 ml、炭酸ナトリウム水溶液〔炭酸ナトリウム 6.2 g (58 mmol) を水 30 ml に溶解〕を入れ、78℃で16時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄して粗結晶 6.8 g を得た。

これを、トルエンを用いて再結晶し、中間体 (IM-9) 6.7 g (17 mmol、収率 89%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{24}H_{16}BrN$ = 397, found, m/z = 397 (M^+ , 100)

(4) 中間体 (IM-10) の合成

500 ml のフラスコにアルゴン気流下、中間体 (IM-9) 6.2 g (16 mmol)、脱水 THF 200 ml を入れ、-70℃に冷やし、ノルマルブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 12 ml を滴下し、-65℃で1.5時間攪拌した。

その後、ボロン酸トリイソプロピルエーテル 8.7 g (46 mmol) を滴下し、徐々に室温に戻し、8時間攪拌した。

フラスコを0℃に冷やし、濃塩酸 50 ml、臭化テトラブチルアンモニウム 125 mg を添加し、更に室温で5時間攪拌した。

析出晶をろ過し、水及びヘキサンで洗浄し、トルエンで再結晶し、中間体 (IM-10) 3.4 g (9.4 mmol) を得た。

(5) 化合物 (B-28') の合成

300 ml のフラスコにアルゴン気流下、中間体 (IM-10) 3.2 g (8.8 mmol)、(IM-8) 4.9 g (8.8 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 203 mg (0.18 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 80 ml、炭酸ナトリウム水溶液〔炭酸ナトリウム 2.9 g (27 mmol) を水 15 ml に溶解〕を入れ、78℃で15時間攪

拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄して粗結晶 4.8 g を得た。

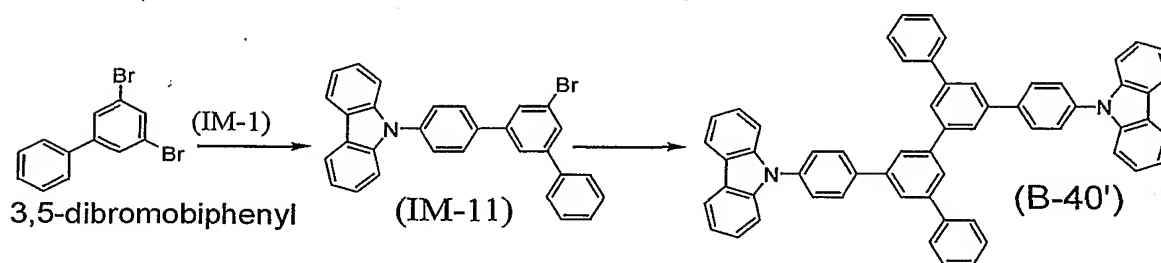
これを、トルエンを用いて再結晶し、化合物 (B-2.8') 2.5 g (3.1 mmol、収率 35%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{60}H_{39}N_3=801$, found, $m/z=801(100)$

また、HPLC (カラム: ODS-3 V、移動相: アセトニトリル/テトラヒドロフラン = 85/15、検出 UV 波長: 254 nm、温度: 40 °C) 分析の結果、このものの純度は、99.3% であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

合成例 5 [化合物 (B-40')] の合成



(1) 中間体 (IM-11) の合成

200 ml のフラスコにアルゴン気流下 3,5-ジブロモビフェニル 3.5 g (11.2 mmol)、中間体 (IM-1) 3.2 g (11.2 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0) 260 mg (0.22 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 60 ml、炭酸ナトリウム水溶液 [炭酸ナトリウム 3.6 g (34 mmol) を水 40 ml に溶解] を入れ、78 °C で 15 時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、酢酸エチルで洗浄後、トルエンに溶解し、水及び飽和食塩水で洗浄し、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去してシリカゲルカラムで精製し、粘性物 (IM-11) 2.9 g (6.1 mmol、収率 54%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{30}H_{20}BrN$ =475, found, m/z =475(100)

(2) 化合物 (B-40') の合成

300 ml のフラスコにアルゴン気流下、中間体 (IM-11) 2.4 g (5.0 mmol)、2,2-ビピリジル 580 mg (0.37 mmol)、1,5-シクロオクタジエン 1.1 g (10 mmol)、ジシクロオクタジエニルニッケル 1.0 g (0.37 mmol) 及び脱水 DMF 120 ml を入れ、60℃で14時間攪拌した。

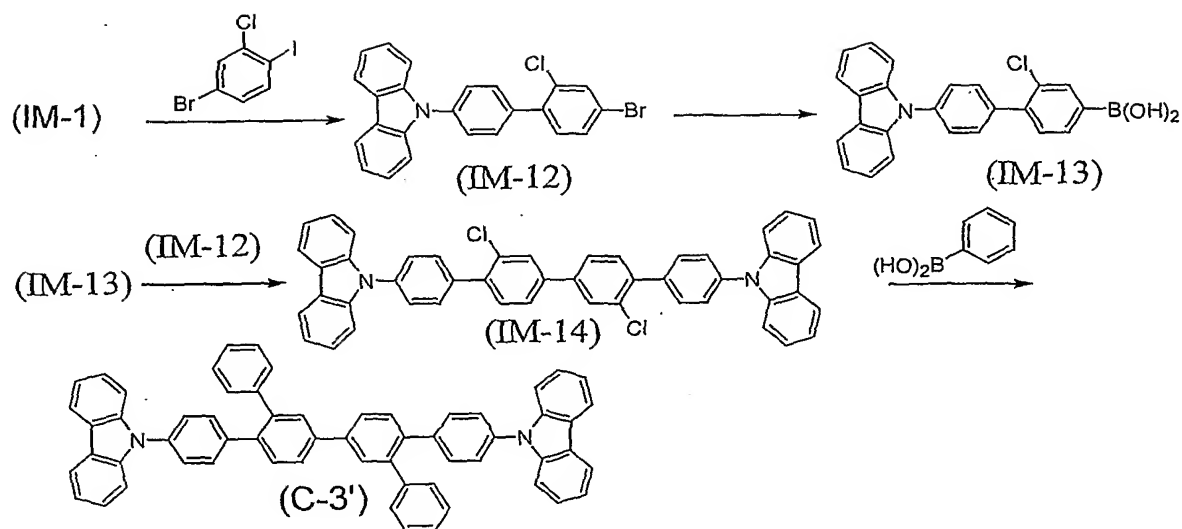
反応終了後、水 120 ml を入れ、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄後、トルエンで再結晶し、化合物 (B-40') 1.8 g (2.3 mmol、収率 46%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{60}H_{40}N_2$ =788, found, m/z =788(100)

また、HPLC (カラム: ODS-3 V、移動相: アセトニトリル/テトラヒドロフラン=85/15、検出 UV 波長: 254 nm、温度: 40℃) 分析の結果、このものの純度は、99.8% であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

合成例 6 [化合物 (C-3') の合成]



(1) 中間体 (IM-12) の合成

1 L のフラスコにアルゴン気流下、室温で 3-クロロ-4-ヨードベンゼン 19.4 g (61 mmol)、中間体 (IM-1) 17.6 g (61 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0) 1.4 g (1.2 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 444 ml、炭酸ナトリウム水溶液〔炭酸ナトリウム 19.4 g (183 mmol) を水 92 ml に溶解〕を入れ、78℃で15時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄後、活性炭処理後、トルエンから再結晶して、中間体 (IM-12) 12.2 g (28 mmol)、収率 46% を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $C_{24}H_{15}BrClN$ = 431, found, m/z = 431 (100)

(2) 中間体 (IM-13) の合成

300 ml のフラスコにアルゴン雰囲気下、中間体 (IM-12) 6 g (14 mmol)、脱水トルエン 60 ml、脱水エーテ

ル 60 ml を入れ、 -40°C に冷やし、攪拌しながらノルマルブチルリチウム (1.6 M ヘキサン溶液) 9.4 ml (15 mmol) を 10 分かけて滴下した。

更に、2 時間攪拌後、ホウ酸トリイソプロピル 8 g (42 mmol) をエーテル 20 ml に希釈した溶液を 10 分かけて滴下し、室温で 6 時間攪拌した。

その後 0°C に冷却し、濃塩酸 45 ml を 20 ml の水で希釈した塩酸を加えて、更に 4 時間攪拌した。

トルエンで抽出し、分液ロートにて溶液を 70 ml の水及び飽和食塩水で順に洗浄し、有機層を無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。

この溶液をろ過後、減圧濃縮し、得られた粘性固体を THF 20 ml に溶解し、ヘキサン 70 ml を加え、減圧下析出晶をろ過し、中間体 (IM-13) 4.1 g (10 mmol)、収率 71%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS: calcd for $\text{C}_{24}\text{H}_{17}\text{BClNO}_2=397$, found, $m/z=397(100)$

(3) 中間体 (IM-14) の合成

300 ml のフラスコにアルゴン雰囲気下、中間体 (IM-13) 4.0 g (10 mmol)、中間体 (IM-12) 4.3 g (10 mmol)、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム (0) 230 mg (0.2 mmol)、DME (ジメトキシエタン) 120 ml 及び炭酸ナトリウム水溶液 [炭酸ナトリウム 3.18 g (30 mmol) を水 18 ml に溶解] を入れ、 78°C で 15 時間攪拌した。

その後、室温まで冷やし、析出晶をろ別し、水、メタノール及びヘキサンで洗浄後、トルエンから再結晶して中間体 (IM-14) 4.9 g (7.0 mmol、収率 70%) を得た。FD-M

S の測定結果を以下に示す。

FD-MS : calcd for $C_{48}H_{30}Cl_2N_2=704$, found, $m/z=704(100)$

(4) 化合物 (C-3') の合成

300 ml のフラスコにアルゴン雰囲気下、中間体 (IM-14) 4.8 g (6.8 mmol)、フェニルボロン酸 (41 mmol)、 $Ni(PPh_3)_2Cl_2$ 650 mg (1.0 mmol)、トリフェニルホスフィン 580 mg (2.0 mmol)、 $K_3PO_4 \cdot nH_2O$ 21.6 g (102 mmol)、脱水トルエン 100 ml を入れ、100℃で24時間攪拌した。

反応液をろ過し、ろ液をカラムにかけ、濃縮物を酢酸エチル及びトルエンから再結晶し、化合物 (C-3') 2.2 g (2.8 mmol、収率 41%) を得た。FD-MS の測定結果を以下に示す。

FD-MS : calcd for $C_{60}H_{40}N_2=788$, found, $m/z=788(100)$

また、HPLC (カラム: ODS-3V、移動相: アセトニトリル/テトラヒドロフラン=85/15、検出UV波長: 254 nm、温度: 40℃) 分析の結果、このものの純度は、99.5%であった。

以上より、得られた結晶は、目的物であることを確認した。

実施例 1

25 mm × 75 mm × 0.7 mm 厚のITO透明電極付きガラス基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。

洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、先ず、透明電極が形成されている側の面上に上記透明電極を覆うようにして膜厚 10 nm の銅フタロシアニン膜 (以下「CuPc膜」と略記する。) を成膜した。このCuPc

膜は、正孔注入層として機能する。CuPc膜の成膜に続けて、この膜上に膜厚30nmの4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜（以下「 α -NPD膜」と略記する。）を成膜した。この α -NPD膜は正孔輸送層として機能する。更に、この α -NPD膜上に膜厚30nmの上記化合物（A-7'）をホスト材料として蒸着し、発光層を成膜した。同時に、りん光発光性のIr金属錯体ドーパントとして、トリス（2-フェニルピリジン）Ir（以下「Ir(ppy)₃」と略記する。）を添加した。

発光層中におけるIr(ppy)₃の濃度は5重量%とした。
この膜は、発光層として機能する。

この膜上に、膜厚10nmの(1,1'-ビスフェニル)-4-オラート)ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム（以下、「BA1q膜」と略記する。）を成膜した。

このBA1q膜は正孔障壁層として機能する。

更に、この膜上に膜厚40nmの8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体（以下、「A1q膜」と略記する。）を成膜した。

このA1q膜は電子注入層として機能する。

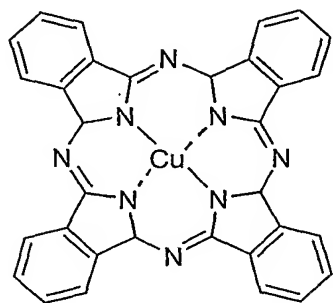
この後、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さに蒸着し、次いでアルミニウムを150nmの厚さに蒸着した。

このA1/LiFは陰極として働く。

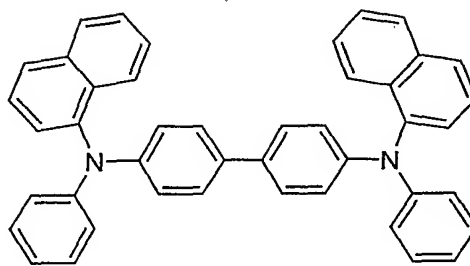
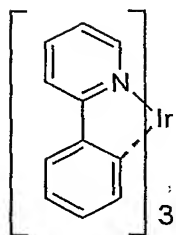
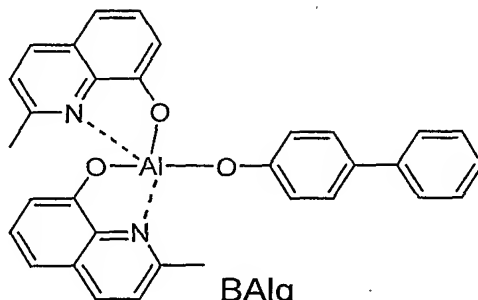
このようにして有機EL素子を作製した。

この素子について、通電試験を行なったところ、電圧5.8V、電流密度0.23mA/cm²にて、輝度101cd/m²の緑色発光が得られ、色度座標は(0.29, 0.64)、発光効率は43.2cd/Aであった。

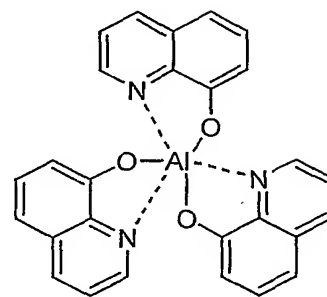
また、この素子を初期輝度 5000 cd/m^2 にて定電流駆動させ、輝度 2500 cd/m^2 まで半減する時間（半減寿命）は、1126 時間であった。



CuPc

 α -NPDIr(ppy)₃

BALq



Alq

実施例 2 ～ 6

発光層のホスト材料化合物（A-7'）に代えて、表 1 に記載の化合物を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

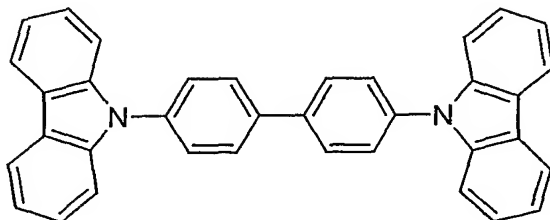
実施例 1 と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表 1 に示す。

比較例 1

発光層のホスト材料化合物（A-7'）に代えて、公知の下記化合物（CBP）を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機

EL素子を作製した。

実施例1と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表1に示す。

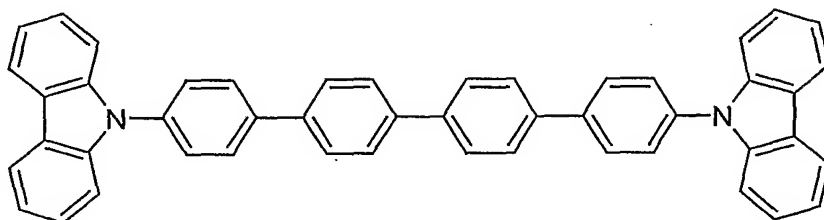


化合物 (CBP)

比較例 2

発光層のホスト材料化合物 (A-7') に代えて、公知の下記化合物 (CTP) を使用する以外は実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製した。

実施例1と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表1に示す。



化合物 (CTP)

表 . 1

	発光層の ホスト材料	電圧 (V)	電流 密度 (mA/ cm ²)	輝度 (cd/ m ²)	発光 効率 (cd/ A)	色度座標 (x, y)	半減 寿命 (時間)
実施例 1	A-7'	5.8	0.23	101	43.2	(0.29, 0.64)	1126
実施例 2	A-16'	5.6	0.25	99	39.7	(0.32, 0.61)	657
実施例 3	B-3'	5.5	0.23	104	46.3	(0.32, 0.61)	1073
実施例 4	B-28'	5.4	0.24	105	43.5	(0.29, 0.64)	912
実施例 5	B-40'	5.5	0.23	101	44.7	(0.30, 0.64)	1086
実施例 6	C-3'	5.8	0.26	100	38.9	(0.31, 0.61)	719
比較例 1	CBT	5.4	0.31	101	32.6	(0.32, 0.61)	305
比較例 2	CTP	6.1	0.78	104	13.4	(0.33, 0.61)	62

表 1 の結果から、本発明の有機 EL 素子用材料を用いた有機 EL 素子は、高効率かつ長寿命な緑色発光が得られることが判明した。

実施例 7

25 mm × 75 mm × 0.7 mm 厚の ITO 透明電極付きガラス基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、UV オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の透明電極付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、先ず、透明電極が形成されている側の面上に上記透明電極を覆うようにして膜厚 10 nm の上記 CuPc 膜を成膜した。この CuPc 膜は、正孔注入層として機能する。CuPc 膜の成膜に続けて、この膜上に膜厚 30 nm の 1, 1'-ビス

[4-N, N-ジ(パラトリル)-アミノフェニル]シクロヘキサン膜(以下「TPAC膜」と略記する。)を成膜した。

このTPAC膜は正孔輸送層として機能する。

更に、このTPAC膜上に膜厚30nmの化合物(B-3')を蒸着し発光層を成膜した。

同時に、りん光性のIr金属錯体として、Irビス[(4,6-ジフルオロフェニル)-ピリジナート-N, C^{2'}]ピコリナート(以下「FIrpic」と略記する。)を添加した。

発光層中におけるFIrpicの濃度は7重量%とした。

この膜は、発光層として機能する。

この膜上に、膜厚30nmの上記Alq膜を成膜した。

このAlq膜は電子注入層として機能する。

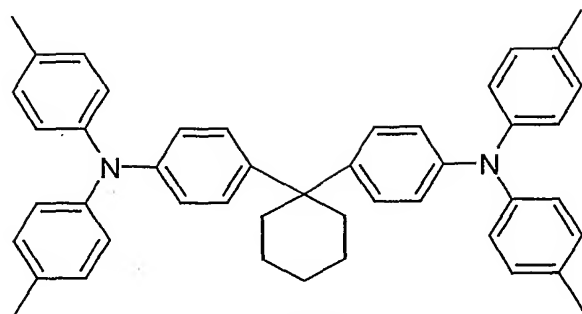
この後、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さに蒸着し、次いで、アルミニウムを150nmの厚さに蒸着した。

このAl/LiFは陰極として働く。

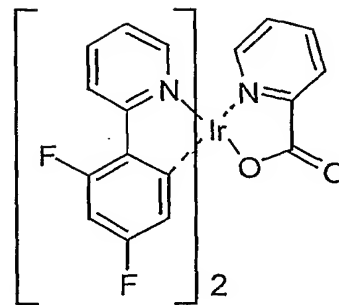
このようにして有機EL素子を作製した。

この素子について、通電試験を行なったところ、電圧7.8V、電流密度0.47mA/cm²にて、輝度101cd/m²の青色発光が得られ、色度座標は(0.17, 0.37)、発光効率は21.6cd/Aであった。

また、この素子を初期輝度500cd/m²にて定電流駆動させ、輝度250cd/m²まで半減する時間(半減寿命)は、71時間であった。



TPAC



Flrpic

実施例 8

実施例 1 において、発光層中の化合物 (B-3') に代えて、化合物 (B-40') を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

実施例 1 と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表 2 に示す。

比較例 3

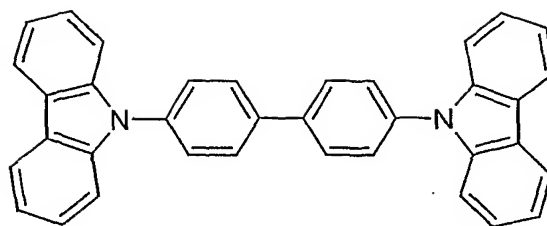
発光層のホスト材料化合物 (A-7') に代えて、公知の上記化合物 (CBP) を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

実施例 1 と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表 2 に示す。

比較例 4

発光層のホスト材料化合物 (A-7') に代えて、公知の下記化合物 (CzTT) を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

実施例 1 と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表 2 に示す。



化合物 (CBP)

比較例 5

発光層のホスト材料化合物 (A-7') に代えて、公知の上記化合物 (CTP) を使用する以外は実施例 1 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

実施例 1 と同様にして、電圧、電流密度、輝度、発光効率、色度及び半減寿命を測定した。結果を表 2 に示す。

表 2.

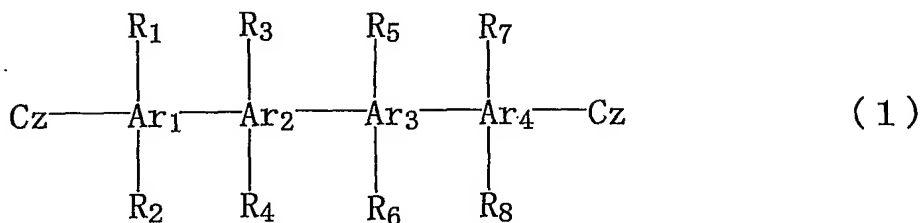
	発光層の ホスト材料	電圧 (V)	電流 密度 (mA/ cm ²)	輝度 (cd/ m ²)	発光 効率 (cd/ A)	色度座標 (x, y)	半減 寿命 (時間)
実施例 7	B-3'	7.8	0.47	101	21.6	(0.17, 0.37)	71
実施例 8	B-40'	7.5	0.44	103	23.6	(0.16, 0.37)	63
比較例 3	CBP	7.8	1.70	98	5.8	(0.16, 0.37)	19
比較例 4	CzTT	8.3	0.86	101	11.8	(0.16, 0.37)	9
比較例 5	CTP	12.4	10.9	87	0.8	(0.16, 0.37)	2

表 2 の結果から、本発明の有機 EL 素子用材料を用いた有機 E

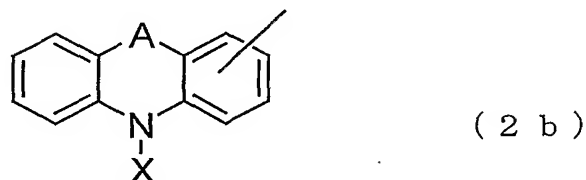
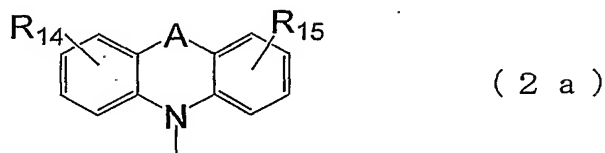
し素子は、高効率かつ長寿命な青色発光が得られることが判明した。

請求の範囲

1. 下記一般式(1)で表される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。



〔式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$ はそれぞれベンゼン残基を表し、 Cz は下記一般式(2a)又は(2b)〕



〔式中、 A は単結合、 $-(CR_9R_{10})_n-$ 、 $-(SiR_{11}R_{12})_n-$ 、 $-NR_{13}-$ 、 $-O-$ 、又は $-S-$ を表し、 n は1～3の整数を表わす。 $R_9 \sim R_{15}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数3～40の複素環基、置換もしくは無置換の炭素数1～40のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数7～40の

アラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキルアミノ基を表し、 R_9 と R_{10} 、又は R_{11} と R_{12} は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

X は、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数 5 ～ 40 の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールアミノ基、又は置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキルアミノ基を表す。)

で表される基である。

$R_1 \sim R_8$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキル基、置換もしくは無置換の核原子数 5 ～ 40 の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 40 のアルキルアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールアミノ基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキルアミノ基、又は C_z 基で

あり、隣接した炭素原子に結合した場合は互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。

但し、一般式(1)において、 $A_{r1} \sim A_{r4}$ の少なくとも1つはm-フェニレン又はo-フェニレンであるか、 $A_{r1} \sim A_{r4}$ の全てがp-フェニレンである場合は、 $R_1 \sim R_8$ の少なくとも1つは置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基、又は上記 C_z 基である。]

2. 一般式(1)において、 A_{r2} 及び A_{r3} は、それぞれ独立に、m-フェニレン又はo-フェニレンであり、 A_{r1} 及び A_{r4} はp-フェニレンである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

3. 一般式(1)において、 A_{r1} 及び A_{r4} は、それぞれ独立に、m-フェニレン又はo-フェニレンであり、 A_{r2} 及び A_{r3} はp-フェニレンである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

4. 一般式(1)において、 A_{r1} 及び A_{r4} は、それぞれ独立に、m-フェニレンであり、かつ R_1 又は R_7 は置換もしくは無置換の核炭素数6～40の芳香族炭化水素基又は C_z 基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

5. 一般式(1)において、 C_z 基が置換もしくは無置換のカルバゾリル基、又は置換もしくは無置換の9-フェニルカルバゾリル基である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

6. 一般式(1)の化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子のホスト材料である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

7. 陰極と陽極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層か

らなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも一層が、請求項 1～6 のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

8. 上記発光層が、上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を宿主材料として含有する請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

9. 上記発光層が宿主材料とりん光発光性の金属錯体からなる請求項 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10. 陰極と有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されている請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

11. 上記発光層と陰極との間に電子注入層を有し、該電子注入層が含窒素誘導体を主成分として含有する請求項 7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/019727

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-313179 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 09 November, 2001 (09.11.01), Claims; table 2; Par. No. [0057] (Family: none)	1-11
A	JP 2000-21572 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 21 January, 2000 (21.01.00), Claims; Par. Nos. [0039] to [0040], [0048] to [0049] (Family: none)	1-11
A	JP 2000-186066 A (Minolta Co., Ltd.), 04 July, 2000 (04.07.00), Claims; Par. No. [0034] (Family: none)	1-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
05 April, 2005 (05.04.05)

Date of mailing of the international search report
26 April, 2005 (26.04.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/019727

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-308837 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 23 October, 2002 (23.10.02), Par. Nos. [0025] to [0027] (Family: none)	1-11
A	WO 01/41512 A1 (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY, THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA), 07 June, 2001 (07.06.01), Full text; all drawings & JP 2003-515897 A	1-11
A	WO 01/72927 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.), 04 October, 2001 (04.10.01), Full text & EP 001205527 A1 & US 2002-0045061 A1	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ C09K11/06, H05B33/14

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ C09K11/06, H05B33/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2001-313179 A (三菱化学株式会社) 2001.11.09, 特許請求の範囲、表2、【0057】ファミリーなし	1-11
A	JP 2000-21572 A (三菱化学株式会社) 2000.01.21, 特許請求の範囲、【0039】-【0040】、【0048】-【0049】ファミリーなし	1-11
A	JP 2000-186066 A (ミノルタ株式会社) 2000.07.04, 特許請求の範囲、【0034】ファミリーなし	1-11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05.04.2005

国際調査報告の発送日

26.4.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

竹村 真一郎

電話番号 03-3581-1101 内線 3271

2V

3494

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-308837 A (富士写真フイルム株式会社) 2002.10.23, 【0025】 - 【0027】 ファミリーなし	1-11
A	WO 01/41512 A1 (THE TRUSTEES OF PRINCETON UNIVERSITY, THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2001.06.07, 全文全図 & JP 2003-515897 A	1-11
A	WO 01/72927 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 2001.10.04, 全文 & EP 001205527 A1 & US 2002-0045061 A1	1-11